

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/006735

International filing date: 30 March 2005 (30.03.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2004-107932  
Filing date: 31 March 2004 (31.03.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 12 May 2005 (12.05.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2004年 3月31日

出 願 番 号  
Application Number: 特願2004-107932

パリ条約による外国への出願  
に用いる優先権の主張の基礎  
となる出願の国コードと出願  
番号

The country code and number  
of your priority application,  
to be used for filing abroad  
under the Paris Convention, is

J P 2004-107932

出 願 人  
Applicant(s): 株式会社ユアサコーポレーション

2005年 4月20日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川



【書類名】 特許願  
【整理番号】 PC16-041YU  
【提出日】 平成16年 3月31日  
【あて先】 特許庁長官 今井 康夫 殿  
【国際特許分類】 B60S 5/02  
【発明者】  
    【住所又は居所】 大阪府高槻市古曽部町二丁目3番21号 株式会社 ユアサ コーポレーション内  
    【氏名】 芦田 勝二  
【発明者】  
    【住所又は居所】 大阪府高槻市古曽部町二丁目3番21号 株式会社 ユアサ コーポレーション内  
    【氏名】 奥山 良一  
【発明者】  
    【住所又は居所】 大阪府高槻市古曽部町二丁目3番21号 株式会社 ユアサ コーポレーション内  
    【氏名】 元井 昌司  
【発明者】  
    【住所又は居所】 大阪府高槻市古曽部町二丁目3番21号 株式会社 ユアサ コーポレーション内  
    【氏名】 山本 好浩  
【特許出願人】  
    【識別番号】 000006688  
    【氏名又は名称】 株式会社 ユアサ コーポレーション  
    【代表者】 大坪 愛雄  
【代理人】  
    【識別番号】 100127513  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 松本 悟  
    【電話番号】 03-3272-1711  
【手数料の表示】  
    【予納台帳番号】 214799  
    【納付金額】 21,000円  
【提出物件の目録】  
    【物件名】 特許請求の範囲 1  
    【物件名】 明細書 1  
    【物件名】 図面 1  
    【物件名】 要約書 1

【書類名】 特許請求の範囲

【請求項 1】

燃料電池自動車に搭載した水素貯蔵容器に水素を供給する水素供給手段と、前記水素供給手段に供給するための水素を含むガスを製造する水素製造装置と、を備えてなる水素供給システムにおいて、前記水素製造装置が、有機物を含む燃料を100℃以下で分解して水素を含むガスを製造するものであることを特徴とする水素供給システム。

【請求項 2】

前記水素製造装置が、有機物を含む燃料を30～70℃で分解して水素を含むガスを製造するものであることを特徴とする請求項1に記載の水素供給システム。

【請求項 3】

前記水素製造装置が、隔膜を備えてなる水素製造セルに外部から電気エネルギーを供給することなく、水素を含むガスを製造するものであることを特徴とする請求項1又は2に記載の水素供給システム。

【請求項 4】

前記水素製造装置が、隔膜を備えてなる水素製造セルから電気エネルギーを取り出しながら、水素を含むガスを製造するものであることを特徴とする請求項1又は2に記載の水素供給システム。

【請求項 5】

前記水素製造装置が、隔膜を備えてなる水素製造セルに外部から電気エネルギーを印加しながら、水素を含むガスを製造するものであることを特徴とする請求項1又は2に記載の水素供給システム。

【請求項 6】

燃料電池自動車に搭載した水素貯蔵容器に水素を供給する水素供給手段と、前記水素供給手段に供給するための水素を含むガスを製造する水素製造装置と、を備えてなる水素供給システムにおいて、前記水素製造装置が、有機物を含む燃料を分解して水素を含むガスを製造するものであり、隔膜、前記隔膜の一方の面に設けた燃料極、前記燃料極に前記燃料を供給する手段、前記隔膜の他方の面に酸素を含む気体を供給する手段を備えてなることを特徴とする水素供給システム。

【請求項 7】

前記水素製造装置が、それを構成する水素製造セルに外部から電気エネルギーを供給する手段を有しないことを特徴とする請求項6に記載の水素供給システム。

【請求項 8】

前記水素製造装置が、前記隔膜の酸素を含む気体を供給する面に酸化電極を設けたことを特徴とする請求項6又は7に記載の水素供給システム。

【請求項 9】

燃料電池自動車に搭載した水素貯蔵容器に水素を供給する水素供給手段と、前記水素供給手段に供給するための水素を含むガスを製造する水素製造装置と、を備えてなる水素供給システムにおいて、前記水素製造装置が、有機物を含む燃料を分解して水素を含むガスを製造するものであり、隔膜、前記隔膜の一方の面に設けた燃料極、前記燃料極に前記燃料を供給する手段、前記隔膜の他方の面に設けた酸化電極、前記酸化電極に酸素を含む気体を供給する手段、前記燃料極を負極とし前記酸化電極を正極として電気エネルギーを取り出す手段を備えてなることを特徴とする水素供給システム。

【請求項 10】

燃料電池自動車に搭載した水素貯蔵容器に水素を供給する水素供給手段と、前記水素供給手段に供給するための水素を含むガスを製造する水素製造装置と、を備えてなる水素供給システムにおいて、前記水素製造装置が、有機物を含む燃料を分解して水素を含むガスを製造するものであり、隔膜、前記隔膜の一方の面に設けた燃料極、前記燃料極に前記燃料を供給する手段、前記隔膜の他方の面に設けた酸化電極、前記酸化電極に酸素を含む気体を供給する手段、前記燃料極を正極とし前記酸化電極を負極として外部から電気エネルギーを印加する手段を備えてなることを特徴とする水素供給システム。

【請求項 1 1】

前記水素製造装置が、前記燃料極と前記酸化電極との間の開回路電圧又は運転電圧を調整することにより、前記水素を含むガスの発生量を調整するものであることを特徴とする請求項 8 ～ 1 0 のいずれか一項に記載の水素供給システム。

【請求項 1 2】

前記開回路電圧又は運転電圧を 3 0 0 ～ 6 0 0 m V に調整することを特徴とする請求項 1 1 に記載の水素供給システム。

【請求項 1 3】

前記酸素を含む気体の供給量を調整することにより、前記開回路電圧又は運転電圧を調整することを特徴とする請求項 1 1 又は 1 2 に記載の水素供給システム。

【請求項 1 4】

前記酸素を含む気体中の酸素濃度を調整することにより、前記開回路電圧又は運転電圧を調整することを特徴とする請求項 1 1 ～ 1 3 のいずれか一項に記載の水素供給システム。

【請求項 1 5】

前記有機物を含む燃料の供給量を調整することにより、前記開回路電圧又は運転電圧を調整することを特徴とする請求項 1 1 ～ 1 4 のいずれか一項に記載の水素供給システム。

【請求項 1 6】

前記有機物を含む燃料の濃度を調整することにより、前記開回路電圧又は運転電圧を調整することを特徴とする請求項 1 1 ～ 1 5 のいずれか一項に記載の水素供給システム。

【請求項 1 7】

前記印加する電気エネルギー又は取り出す電気エネルギーを調整することにより、前記開回路電圧又は運転電圧を調整することを特徴とする請求項 1 1 ～ 1 6 のいずれか一項に記載の水素供給システム。

【請求項 1 8】

前記隔膜がプロトン導電性固体電解質膜であることを特徴とする請求項 6 ～ 1 7 のいずれか一項に記載の水素供給システム。

【請求項 1 9】

前記プロトン導電性固体電解質膜がパーフルオロカーボンスルホン酸系固体電解質膜であることを特徴とする請求項 1 8 に記載の水素供給システム。

【請求項 2 0】

前記隔膜が酸素溶解性の高分子膜であることを特徴とする請求項 6 ～ 1 7 のいずれか一項に記載の水素供給システム。

【請求項 2 1】

前記燃料極の触媒が白金－ルテニウム合金を炭素粉末に担持したものであることを特徴とする請求項 6 ～ 2 0 のいずれか一項に記載の水素供給システム。

【請求項 2 2】

前記酸化電極の触媒が白金を炭素粉末に担持したものであることを特徴とする請求項 8 ～ 2 1 のいずれか一項に記載の水素供給システム。

【請求項 2 3】

前記有機物を含む燃料がメタノールを含む水溶液であることを特徴とする請求項 1 ～ 2 2 のいずれか一項に記載の水素供給システム。

【請求項 2 4】

前記有機物を含む燃料の循環手段を設けたことを特徴とする請求項 1 ～ 2 3 のいずれか一項に記載の水素供給システム。

【請求項 2 5】

生成した前記水素を含むガスに含まれる二酸化炭素を吸収する二酸化炭素吸収部を設けたことを特徴とする請求項 1 ～ 2 4 のいずれか一項に記載の水素供給システム。

【書類名】 明細書

【発明の名称】 水素供給システム

【技術分野】

【0001】

本発明は、燃料電池自動車に搭載した水素貯蔵容器に水素を供給するための水素供給システムに関するものである。

【背景技術】

【0002】

現在、環境問題、資源問題等に対する対策から、燃料電池自動車の開発が活発に行われている。燃料電池自動車としては、水素ガスや水素貯蔵合金の形態の水素を貯蔵した容器を搭載した燃料電池自動車が開発されているが、その普及にあたっての大きな課題は、水素供給インフラの整備である。すなわち、自由に走行する燃料電池自動車に対して、いかに広域の水素供給インフラを整備するかといった課題がある。そこで、水素供給ステーションにて都市ガスないし液体燃料（脱硫ナフサ、ガソリン、灯油、軽油、メタノール等）を改質装置により水蒸気改質して水素を製造し、これを水素貯蔵タンクに貯蔵しておき、この水素を燃料電池自動車に搭載した水素貯蔵容器に供給するシステムが、都市ガス配管網、給油スタンド等の既設インフラを最大限利用できるというメリットがあるために、最も多く開発されている（例えば、特許文献1～3参照）。

しかしながら、上記の水素供給システムは、改質装置が高価であり、また、装置サイズが大きく、あるいは、装置の保守・運転が複雑で高度の技術を必要とする、等の問題がある。

【特許文献1】 特許公開2002-315111号公報

【特許文献2】 特許公開2002-337999号公報

【特許文献3】 特許公開2003-118548号公報

【特許文献4】 特許公開2004-79262号公報

【0003】

また、改質装置としては、上記燃料のうち、改質温度の最も低いメタノール改質装置についての開発が最も進んでおり、水蒸気改質、部分酸化改質、両者を併用した併用改質の3つが採用されている（非特許文献1参照）が、いずれの改質方法を採用しても、水素を含むガスを製造するためには、200℃以上という高温で改質を行わなければならない、改質触媒の被毒、改質されたガス（水素を含むガス）に含まれるCOの除去、部分酸化改質や併用改質における改質されたガス中への空気中の窒素の混入等の問題があった。

【非特許文献1】 「固体高分子型燃料電池の開発と実用化」第141頁～第166頁、1999年5月28日、（株）技術情報協会発行

【0004】

一方、上記のように有機物を含む燃料を改質する代わりに、水を電気分解して水素を製造し、これを水素貯蔵タンクに貯蔵しておき、この水素を燃料電池自動車に搭載した水素貯蔵容器に供給するシステムも開発されている（例えば、特許文献5及び6参照）。

このシステムによれば、有機物を含む燃料を改質するような高温とする必要はないものの、大量の電力を必要とするという問題がある。

【特許文献5】 特許公開2002-161998号公報

【特許文献6】 特許公開2002-363779号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

本発明は、上記のような問題を解決するものであり、燃料電池自動車に搭載した水素貯蔵容器に容易に水素を供給することができ、また、低温で水素を含むガスを製造することができ、しかも、大きな電気エネルギーを必要としない水素製造装置を使用した水素供給システムを提供することを課題とする。

【課題を解決するための手段】

上記課題を解決するために、本発明においては、以下の手段を採用する。

(1) 燃料電池自動車に搭載した水素貯蔵容器に水素を供給する水素供給手段と、前記水素供給手段に供給するための水素を含むガスを製造する水素製造装置と、を備えてなる水素供給システムにおいて、前記水素製造装置が、有機物を含む燃料を100℃以下で分解して水素を含むガスを製造するものであることを特徴とする水素供給システム。

(2) 前記水素製造装置が、有機物を含む燃料を30～70℃で分解して水素を含むガスを製造するものであることを特徴とする前記(1)の水素供給システム。

(3) 前記水素製造装置が、隔膜を備えてなる水素製造セルに外部から電気エネルギーを供給することなく、水素を含むガスを製造するものであることを特徴とする前記(1)又は(2)に記載の水素供給システム。

(4) 前記水素製造装置が、隔膜を備えてなる水素製造セルから電気エネルギーを取り出しながら、水素を含むガスを製造するものであることを特徴とする前記(1)又は(2)に記載の水素供給システム。

(5) 前記水素製造装置が、隔膜を備えてなる水素製造セルに外部から電気エネルギーを印加しながら、水素を含むガスを製造するものであることを特徴とする前記(1)又は(2)に記載の水素供給システム。

(6) 燃料電池自動車に搭載した水素貯蔵容器に水素を供給する水素供給手段と、前記水素供給手段に供給するための水素を含むガスを製造する水素製造装置と、を備えてなる水素供給システムにおいて前記水素製造装置が、有機物を含む燃料を分解して水素を含むガスを製造するものであり、隔膜、前記隔膜の一方の面に設けた燃料極、前記燃料極に前記燃料を供給する手段、前記隔膜の他方の面に酸素を含む気体を供給する手段を備えてなることを特徴とする水素供給システム。

(7) 前記水素製造装置が、それを構成する水素製造セルに外部から電気エネルギーを供給する手段を有しないことを特徴とする前記(6)の水素供給システム。

(8) 前記水素製造装置が、前記隔膜の酸素を含む気体を供給する面に酸化電極を設けたことを特徴とする前記(6)又は(7)の水素供給システム。

(9) 燃料電池自動車に搭載した水素貯蔵容器に水素を供給する水素供給手段と、前記水素供給手段に供給するための水素を含むガスを製造する水素製造装置と、を備えてなる水素供給システムにおいて、前記水素製造装置が、有機物を含む燃料を分解して水素を含むガスを製造するものであり、隔膜、前記隔膜の一方の面に設けた燃料極、前記燃料極に前記燃料を供給する手段、前記隔膜の他方の面に設けた酸化電極、前記酸化電極に酸素を含む気体を供給する手段、前記燃料極を負極とし前記酸化電極を正極として電気エネルギーを取り出す手段を備えてなることを特徴とする水素供給システム。

(10) 燃料電池自動車に搭載した水素貯蔵容器に水素を供給する水素供給手段と、前記水素供給手段に供給するための水素を含むガスを製造する水素製造装置と、を備えてなる水素供給システムにおいて、前記水素製造装置が、有機物を含む燃料を分解して水素を含むガスを製造するものであり、隔膜、前記隔膜の一方の面に設けた燃料極、前記燃料極に前記燃料を供給する手段、前記隔膜の他方の面に設けた酸化電極、前記酸化電極に酸素を含む気体を供給する手段、前記燃料極を正極とし前記酸化電極を負極として外部から電気エネルギーを印加する手段を備えてなることを特徴とする水素供給システム。

(11) 前記水素製造装置が、前記燃料極と前記酸化電極との間の開回路電圧又は運転電圧を調整することにより、前記水素を含むガスの発生量を調整するものであることを特徴とする前記(8)～(10)のいずれか一の水素供給システム。

(12) 前記開回路電圧又は運転電圧を300～600mVに調整することを特徴とする前記(11)の水素供給システム。

(13) 前記酸素を含む気体の供給量を調整することにより、前記開回路電圧又は運転電圧を調整することを特徴とする前記(11)又は(12)の水素供給システム。

(14) 前記酸素を含む気体中の酸素濃度を調整することにより、前記開回路電圧又は運転電圧を調整することを特徴とする前記(11)～(13)のいずれか一の水素供給シス

テム。

(15) 前記有機物を含む燃料の供給量を調整することにより、前記開回路電圧又は運転電圧を調整することを特徴とする前記(11)～(14)のいずれか一の水素供給システム。

(16) 前記有機物を含む燃料の濃度を調整することにより、前記開回路電圧又は運転電圧を調整することを特徴とする前記(11)～(15)のいずれか一の水素供給システム。

(17) 前記取り出す電気エネルギー又は印加する電気エネルギーを調整することにより、前記開回路電圧又は運転電圧を調整することを特徴とする前記(11)～(16)のいずれか一に記載の水素供給システム。

(18) 前記隔膜がプロトン導電性固体電解質膜であることを特徴とする前記(6)～(17)のいずれか一の水素供給システム。

(19) 前記プロトン導電性固体電解質膜がパーフルオロカーボンスルホン酸系固体電解質膜であることを特徴とする前記(18)の水素供給システム。

(20) 前記隔膜が酸素溶解性の高分子膜であることを特徴とする前記(6)～(17)のいずれか一の水素供給システム。

(21) 前記燃料極の触媒が白金-ルテニウム合金を炭素粉末に担持したものであることを特徴とする前記(6)～(20)のいずれか一の水素供給システム。

(22) 前記酸化電極の触媒が白金を炭素粉末に担持したものであることを特徴とする前記(8)～(21)のいずれか一の水素供給システム。

(23) 前記有機物を含む燃料がメタノールを含む水溶液であることを特徴とする前記(1)～(22)のいずれか一の水素供給システム。

(24) 前記有機物を含む燃料の循環手段を設けたことを特徴とする前記(1)～(23)のいずれか一の水素供給システム。

(25) 生成した前記水素を含むガスに含まれる二酸化炭素を吸収する二酸化炭素吸収部を設けたことを特徴とする前記(1)～(24)のいずれか一の水素供給システム。

#### 【0007】

ここで、水素製造装置とは、ポンプ、ブロー等燃料及び酸素を含むガスを供給する手段を有しており、場合により、水素製造セルから電気エネルギーを取りだすための放電制御手段を有するものであり、また、水素製造セルに電気エネルギーを印加するための電解手段を有するものである。さらに、水素製造セルの開回路電圧又は運転電圧をモニターして、これらガスの供給量若しくは濃度又は取り出す若しくは印加する電気エネルギーをコントロールする機能を有している。なお、水素製造装置を構成する水素製造セルの基本構成は、隔膜の一方の面に燃料極を設け、該燃料極に燃料を供給するための構造、前記隔膜の他方の面に酸素を含む気体を供給するための構造を有したものであるが、該他方の面に酸化電極を設けるものも包含する。

また、燃料電池自動車とは、燃料電池のみで車両の駆動力を得るものに限定されず、他の動力源を併用するハイブリッドカーを含むものである。

#### 【発明の効果】

#### 【0008】

本発明の水素供給システムは、室温から100℃以下という従来の改質温度と比較して格段に低い温度で燃料を改質することができる水素製造装置を使用しているので、起動に要する時間が短くできるだけでなく、改質器の温度を上昇させるためのエネルギーが少なくできて、燃料電池に容易に水素を供給することができるという効果を奏する。また、水素製造セルに外部から電気エネルギーを供給することなく、水素を発生させることができ、さらに、水素製造セルの電圧をモニターすることによってプロセスコントロールが可能となり、水素製造装置のコンパクト化を図ることができるので、水素供給システムの製造コストが低減できるという効果を奏する。

水素製造装置が、電気エネルギーを取り出す手段を備えている場合には、その電気エネルギーをポンプ、ブロー等の補器その他を動かすために利用できるため、エネルギーの有

効利用の観点から効果は大きい。

外部から電気エネルギーを印加する手段を備えている場合でも、水素製造セルに外部から少量の電気エネルギーを供給することにより、投入した電気エネルギー以上の水素を発生することができるという効果を奏する。

【発明を実施するための最良の形態】

【0009】

以下に、本発明を実施するための最良の形態を例示する。

特に、本発明の水素供給システムに使用する水素製造装置は、基本的に新規なものであり、以下に述べるのは、あくまでも一形態にすぎず、これにより本発明が限定されるものではない。

【0010】

本発明の水素供給システムの基本的な構成は、燃料電池自動車に搭載した水素貯蔵容器に水素を供給する水素供給手段と、前記水素供給手段に供給するための水素を含むガスを製造する水素製造装置と、を備えてなるものである。

図1に、本発明の水素供給システムのシステムフローの一例を示す。

水素製造装置は低温で作動するので、昇温のためのヒータを設けることは図1に示すように不要であるが、必要に応じて設けてもよい。

【0011】

燃料電池自動車に搭載した水素貯蔵容器に水素を供給する水素供給手段は、例えば、水素昇圧機、高圧水素貯蔵タンク、水素ディスベンサを備えたものである。

【0012】

水素昇圧機としては、水素圧縮ポンプが一般的に用いられるが、水素を昇圧できる装置であればいかなるものを用いることも可能である。水素昇圧機出口の水素ガス圧力は、容積効率の観点から高くすることが望ましく、好ましくは50気圧(5MPa)以上、より好ましくは100気圧(10MPa)以上、さらには200気圧(20MPa)以上が好ましい。また、上限については、特に限定されないが、実用上1000気圧(100MPa)以下が好ましい。

【0013】

水素昇圧工程を経た後、水素を貯蔵するために高圧水素貯蔵タンクを設けることが好ましい。高圧水素貯蔵タンクとしては、昇圧された水素に耐えるものであれば特にその形態は限定されるものではなく、公知のものを適用することが可能であり、高圧水素ガスをそのまま貯蔵する高圧水素貯蔵タンクその他、水素吸蔵合金を内蔵した高圧水素貯蔵タンクでもよい。

【0014】

水素ガスを高圧水素貯蔵タンクから水素ディスベンサに導く。また、高圧水素貯蔵タンクを通さずに直接、水素昇圧機の出口ガスを水素ディスベンサに導くこともできる。その場合には、水素昇圧機と水素ディスベンサを接続する配管を設ける。

【0015】

水素ディスベンサは、水素ガスを、水素を燃料とする燃料電池自動車の水素貯蔵容器に供給するものであり、公知のディスベンサを用いることができる。この水素貯蔵容器は、燃料電池自動車に搭載されたままの水素貯蔵容器であってもよく、この容器が燃料電池自動車から取り外し可能なものである場合は、燃料電池自動車から取り外された状態の水素貯蔵容器であってもよい。

【0016】

本発明の水素供給システムに使用する水素製造装置における水素製造セルは、隔膜と、隔膜の一方の面に燃料極を設けることを基本的な構成としている。この水素製造装置においては、後述するように、原理的に酸化電極(空気極)が必要とは考えられないが、隔膜の他方の面には、空気極を設けることが好ましい。直接メタノール型燃料電池で採用されているようなMEA(電解質/電極接合体)を採用することができる。

【0017】

MEAの作製方法は限定されるものではないが、燃料極と空気極をホットプレスによって隔膜の両面に接合する従来と同様の方法で作製することができる。

#### 【0018】

隔膜としては、燃料電池において高分子電解質膜として使用されているプロトン導電性固体電解質膜や酸素溶解性の高分子膜を用いることができる。プロトン導電性固体電解質膜としては、デュポン社のナフィオン膜等のスルホン酸基を持つパーフルオロカーボン系膜が好ましい。また、プロトン導電性膜だけでなく、他のイオン導電性膜も使用できる可能性がある。さらに、イオン導電性ガラス等の無機材料からなる隔膜も使用できる可能性がある。

#### 【0019】

酸素溶解性の高分子膜は、本発明の水素供給システムに使用する水素製造装置の原理を部分酸化改質であると考えた場合に使用できると考えられ、具体的には、ポリヒドロキシメタアクリレート（含水率36%）およびヒドロキシメタアクリレートとn-ビニルピロリドン共重合体（含水率78%）からなるソフトコンタクトレンズ材料や、水を含まないシリコン膜、ポリトリメチルシリルプロピン膜、ビニル芳香族アミンを含む重合体に、酸素をきわめて迅速に吸脱着できるコバルトボルフィリンを高い配合率で含む薄膜や、オリゴシロキサン鎖およびオリゴオキシアルキレン鎖を交互に有する高分子化合物からなる膜が考えられる。

#### 【0020】

燃料極及び空気極は、導電性を有し、触媒活性を有する電極であることが好ましく、例えば、ガス拡散層に、炭素粉末等からなる担体上に担持させた触媒とPTFE樹脂等の結着剤とナフィオン溶液等のイオン導電性を付与するための物質とを含有する触媒ペーストを塗布し乾燥して作製することができる。

ガス拡散層としては、撥水処理を行ったカーボンペーパー等からなるものが好ましい。

燃料極触媒としては、任意のものを使用できるが、白金-ルテニウム合金が好ましい。

空気極触媒としては、任意のものを使用できるが、白金が好ましい。

#### 【0021】

上記のような構成の水素製造装置において、燃料極にメタノールを含む水溶液等の有機物を含む燃料を供給し、空気極に酸素を含む気体を供給すると、特定の条件下で、燃料極に水素を含むガスが発生する。

#### 【0022】

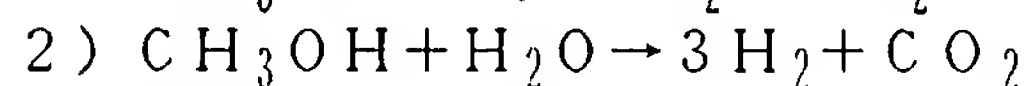
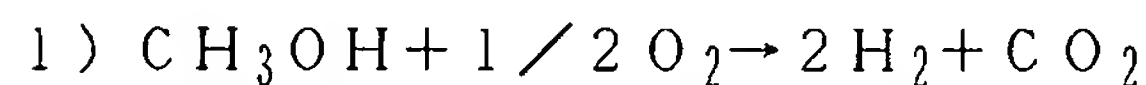
本発明の水素供給システムに使用する水素製造装置の水素発生方法は、従来の水素発生方法とは全く異なるものであり、また、現時点ではそのメカニズムを説明することは困難である。以下に現時点での推定を示すが、全く新規な反応が生じている可能性も否定はできない。

#### 【0023】

本発明では後述のごとく、30～70℃といった低温で、しかもメタノールと水を供給している燃料極側から、水素を含むガスが発生している。水素製造セルに外部から電気エネルギーを供給しない場合には、70～80%程度の水素濃度のガスが発生し、水素製造セルに外部から電気エネルギーを印加した場合には、80%以上の水素濃度のガスが発生している。しかも、そのガスの発生は両極の開回路電圧又は運転電圧に依存していることが分かっている。このような結果から水素発生メカニズムを以下のように推定する。

#### 【0024】

まず、一般にメタノールから水素を発生させる方法としては、以下の2つの反応がある。



#### 【0025】

1) は部分酸化反応と呼ばれる反応であり、メタノール1molが反応して水素2molが生成する。この反応は発熱反応であり、この反応が進むと外部に熱を発生する。

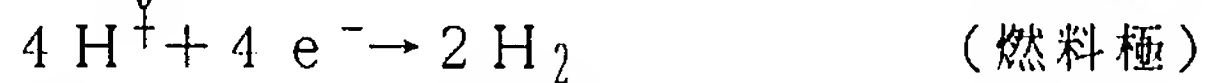
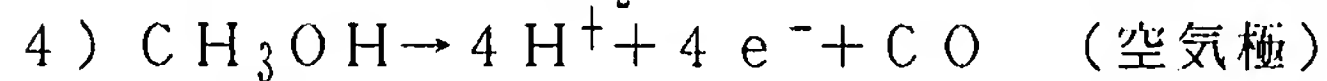
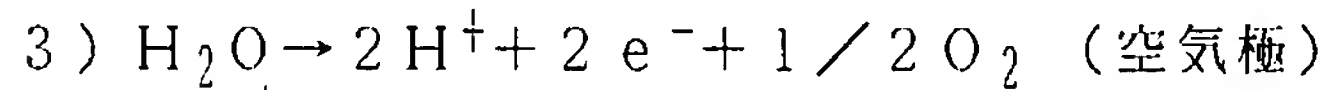
本発明で採用する水素製造セルにおいてこの部分酸化反応が進行していると仮定すると、反応に必要な酸素はMEAの空気極側から、電解質膜を拡散して供給されている可能性が大きい。

本発明で電解質に用いたナフイオンはプロトン導電性ととも、メタノール、水の拡散が大きいことが知られており、また、酸素透過性も大きいと言われている。

このため本発明における水素の発生メカニズムとしては、電解質膜を透過した酸素によって燃料中のメタノールが部分酸化されて、水素が発生している可能性がある。

#### 【0026】

さらに、燃料極を正極とし酸化電極（空気極）を負極として外部から電気エネルギーを印加すると、電気分解によって、水素を発生させる場合もあり、その際には



の反応によって、燃料極側に水素が発生することが考えられるが、上記反応のみでは、投入した電気エネルギー以上の水素が得られることはない。

#### 【0027】

ここで、セルの電位がどのような意味を持つかについて説明する。一般に電解質膜を挟んで両極にガス電極を構成したセルの電圧は、電解質内を導電するイオンの両極での化学ポテンシャルの差によって発生する。

つまり、電解質に水素イオン導電性のナフイオンを用いているため、観測している電圧はセルの両極での水素の化学ポテンシャル、言いかえると水素分圧の差を示している。

#### 【0028】

この場合、両極には水が存在するため、水素分圧の差はそのまま、平衡関係にある酸素分圧の差を表しているといえることができる。つまり、空気極側には酸素分圧（0.21）の空気を供給していることから考えて、観測している開回路電圧又は運転電圧は燃料極側の酸素分圧をモニターしていることとなる。

このことは、後述する水素製造装置の例に示すように、開回路電圧又は運転電圧が一定の電圧範囲になった時、言いかえると燃料極の酸素分圧が一定範囲の時に上記部分酸化が進むと考えると理解できる。

#### 【0029】

次に2)式に示した水蒸気改質反応（本発明においては、反応は100℃以下で起き、水蒸気が発生していないから、厳密には、水による改質反応であるが、便宜的に、従来の「水蒸気改質反応」という表現を使う。）が起こっている可能性について述べる。

水蒸気改質反応ではメタノール1molにつき水素3molが生成する。また、この反応は吸熱反応であり、反応を継続させるためには外部から熱を与える必要がある。

#### 【0030】

この反応が本発明の水素製造セルで起こっているとすると、反応物質であるメタノールと水は直接供給していることから理解はしやすいものの、重要な疑問が残る。

それは、上記部分酸化反応では、酸素の燃料極への拡散を仮定することによって燃料極側の酸素分圧の変化を説明できるものの、水蒸気改質反応が生じるとした場合には燃料極側の酸素分圧変化の原因を現時点では説明できない。

#### 【0031】

しかし、いずれにしても、部分酸化反応、水蒸気改質反応のいずれか、もしくはこの両方の反応によって、本発明において採用する水素製造セル内部で水素が発生している可能性が大きい。

#### 【0032】

上記のように、燃料極において、有機物を含む燃料の部分酸化反応、水蒸気改質反応のいずれか、もしくはこの両方の反応が生じていると推定されるから、水素を発生させるためには、隔膜の一方の面に燃料極を設け、前記燃料極に燃料を供給し、さらに前記隔膜の

他方の面に酸素を含む気体を供給することは必要であるが、前記隔膜の酸素を含む気体を供給する面に、必ず酸化電極（空気極）を設けなければならないとは考えられない。しかし、後述の水素製造装置の例に示すように、有機物を含む燃料としてメタノールを含む水溶液を使用する場合には、空気極を設けることが好ましい。

また、水素製造装置が、燃料極を負極とし酸化電極を正極として電気エネルギーを取り出す手段、又は燃料極を正極とし酸化電極を負極として外部から電気エネルギーを印加する手段を備えている場合には、酸化電極（空気極）を設ける。

#### 【0033】

本発明の水素供給システムに使用する水素製造装置は、有機物を含む燃料を100℃以下で分解して水素を含むガスを製造することができる。有機物を含む燃料を30～70℃で分解して水素を含むガスを製造することが好ましい。

なお、100℃以上での運転が必要であった従来の改質技術では、水は水蒸気になり、有機物を含む燃料はガス化し、このような条件下で水素を発生させても、水素を分離する手段を別途用いる必要があるため、本発明は、この点において有利である。

しかし、有機物を含む燃料を100℃以上の温度で分解すると、上記のようなデメリットはあるが、本発明は、水素製造装置を100℃を若干超える温度で作動させることを否定するものではない。

#### 【0034】

この水素製造装置においては、水素製造セルに外部から電気エネルギーを供給しない場合でも、外部に電気エネルギーを取り出す場合でも、また、外部から電気エネルギーを印加した場合でも、燃料極と酸化電極（空気極）との間の開回路電圧又は運転電圧を調整することにより、水素を含むガスの発生量を調整することができる。

開回路電圧又は運転電圧は300～600mVに調整することが好ましい。

#### 【0035】

開回路電圧又は運転電圧は、酸素を含む気体の供給量を調整すること、該気体中の酸素濃度を調整すること、有機物を含む燃料の供給量を調整すること、有機物を含む燃料の濃度を調整すること、外部に取り出す電気エネルギー（電流密度）を調整すること、外部から印加する電気エネルギー（電流密度）を調整することにより調整することができ、これにより、水素を含むガスの発生量を調整することができる。

#### 【0036】

推定される原理から考えて、有機物を含む燃料としては、液体有機物、気体有機物を含む燃料が適用できる。液体有機物は、水素を含み、酸素又は水と反応して分解するものであればよく、制限されないが、メタノール、エタノール、イソプルピルアルコール、ジメチルエーテル等の液体有機物を含むものが好ましい。特に、メタノールを含む水溶液が好ましい。なお、上記した燃料の一例としてのメタノールを含む水溶液は、少なくともメタノールと水を含む溶液であり、水素ガスを発生する領域において、その濃度は任意に選択することができる。一方、メタン、天然ガス等の気体有機物を含む燃料を使用することもできる。

#### 【0037】

本発明においては、水素製造装置に投入した燃料が該装置内で一回で消費され、水素に分解される割合は低いので、燃料の循環手段を設けて、水素への変換率を高めることが好ましい。

#### 【0038】

本発明の水素供給システムに使用する水素製造装置は、100℃以下という低い温度で作動するものであるから、水素を含むガスに含まれる二酸化炭素を吸収する二酸化炭素吸収部を、簡便な手段により設けることができる。

次に、この水素製造装置で水素を含有するガスを製造する例を示すが、触媒、PTFE、ナフィオンの割合等、触媒層、ガス拡散層、電解質膜の厚さ等は適宜変更し得るものであり、この例により限定されるものではない。

#### 【0039】

#### (水素製造例1)

水素製造装置の水素製造セルは代表的な直接メタノール型燃料電池と同じ構造とした。その水素製造セルの概略を図2に示す。

すなわち、電解質にデュボン社製プロトン導電性電解質膜(ナフィオン115)を用い、空気極にはカーボンペーパー(東レ製)を5%濃度のポリテトラフルオロエチレン分散液に浸漬したのち、360℃で焼成して撥水処理し、その片面に空気極触媒(白金担持カーボン:田中貴金属製、TEC10V50E)とPTFE微粉末と5%ナフィオン溶液(アルドリッチ製)を混合して作製した空気極触媒ペーストを塗布して空気極触媒付きガス拡散層を構成した。ここで、空気極触媒、PTFE、ナフィオンの重量比は65%:15%:20%とした。このようにして作製した空気極の触媒量は白金換算で $1\text{ mg/cm}^2$ であった。

#### 【0040】

さらに同じ方法を用いてカーボンペーパーを撥水処理し、さらにその片面に燃料極触媒(白金ルテニウム担持カーボン:田中貴金属製、TEC61E54)とPTFE微粉末と5%ナフィオン溶液を混合して作製した燃料極触媒ペーストを塗布して燃料極触媒付きガス拡散層を構成した。ここで、燃料極触媒、PTFE、ナフィオンの重量比は55%:15%:30%とした。このようにして作製した燃料極の触媒量は白金-ルテニウム換算で $1\text{ mg/cm}^2$ であった。

#### 【0041】

上記、電解質膜、空気極触媒付きガス拡散層、燃料極触媒付きガス拡散層を140℃、 $100\text{ kg/cm}^2$ でホットプレスによって接合してMEAを作製した。このようにして作製したMEAの有効電極面積は $60.8\text{ cm}^2$ であった。作製後の空気極及び燃料極の触媒層、ガス拡散層の厚さは、それぞれ、約 $30\text{ }\mu\text{m}$ 、および $170\text{ }\mu\text{m}$ でほぼ同じであった。

#### 【0042】

上記のMEAを、それぞれ、空気を流すため、および燃料を流すための流路を設け、さらに、ガスリークを防止するためにフェノール樹脂を含浸させたグラファイト製の空気極セパレータ板、燃料極セパレータ板によって挟み込み、単セルを構成した。また、燃料および空気のリークを防止するためにMEAの周辺部にはシリコンゴム製のバックリングを設けた。

#### 【0043】

このようにして作製した水素製造セルを熱風循環型の電気炉内に設置し、電池温度30~70℃で、空気極側に空気を0~400ml/分の流量、燃料極側に0.5M~2Mのメタノール水溶液(燃料)を2~15ml/分の流量で流し、その時の燃料極と空気極の電圧差(オープン電圧)、燃料極側で発生するガス量、ガス組成について検討を行った。

#### 【0044】

まず、セルへのメタノール水溶液(燃料)の流量を8ml/分で一定とし、30℃、50℃、70℃の各温度で空気流量を変化させ、燃料極側から発生するガスの発生量を測定した。ガス発生量の測定には水中置換法を用いた。

#### 【0045】

その結果を図3に示す。

これより、各温度において、空気流量を少なくすることによって、セルの燃料極側から、ガスの発生が確認された。また、そのガスの発生量は温度が高いほど、多いことが分かった。さらに、空気流量とセルの開回路電圧(オープン電圧)との関係を調べると、空気流量を少なくするとそれに伴って、セルの開回路電圧が低下する傾向が認められた。

#### 【0046】

図4に図3の結果を開回路電圧とガス発生量の関係として整理した。

これより、ガス発生量は開回路電圧に依存する傾向を示し、開回路電圧400~600mVでガスが発生することが分かった。また、いずれの温度においても、ガス発生量のピークは450mV付近で観察された。

#### 【0047】

次に、最もガス発生速度の大きかった、温度70℃、燃料流量8ml/分、空気流量120ml/分の条件でガスを発生させ、ガス中の中の水素濃度をガスクロマトグラフィーを用いて測定した。

その結果、発生ガス中には水素が約70%含まれていることが確認された。

#### 【0048】

ここで、重要な点は、本製造例では水素製造セルには外部から一切電流もしくは電圧を印加することは行っておらず、単に内部インピーダンス、10Ω以上のエレクトロメーターで開回路電圧を計測しながら、燃料および空気のみを供給している点である。

言いかえると、この水素製造セルでは、燃料、空気の供給以外に外部からエネルギーを供給することなく、燃料の一部を水素に変換していることになる。

しかも、メタノールを含む水溶液を30℃～70℃といった習得的な低温度で改質するものであり、従来にない、全く新規な水素製造装置であると考えられる。

また、図3及び図4より、水素を含むガスの発生量は温度が高いほど多くなることが明らかであるから、水素を含むガスの発生量を高めるために、メタノールを含む水溶液の温度を70～100℃の範囲に設定して改質することもできる。

#### 【0049】

(水素製造例2)

水素製造例1と同じ水素製造セルを用いて、次に、セル温度70℃において、燃料を、2、8、15ml/分の流量で、それぞれ、空気流量を変化させた時の燃料流量、空気流量とガス発生量、セルの開回路電圧の関係を図5に示す。

これより、燃料流量の少ない方が、ガスの発生量は大きいことが分かった。

#### 【0050】

図6に図5の結果を開回路電圧とガス発生量の関係として整理した。

これより、それぞれの条件でのガス発生量は開回路電圧に依存していることが分かった。また、いずれの燃料流量においても、水素製造例1と同様に450mV付近にその発生量のピークが観察された。

#### 【0051】

さらに、本製造例で最大のガス発生量(18.1ml/分、開回路電圧442mV)が得られた条件(運転温度70℃、燃料濃度1M、燃料流量2ml/分、空気流量100ml/分)での発生ガス中の水素濃度を水素製造例1と同様にガスクロマトグラフィーによって求めたところ約70%であった。

#### 【0052】

上記の結果より、今回の反応が部分酸化反応であると仮定(メタノール1molから水素2molが発生する)して、メタノールから水素への変換効率を求めた。

その結果、14%の変換率でメタノールが水素に変換されている可能性があることが分かった。この変換率は必ずしも高くないが、これは、投入した燃料がセル内ですべて消費されたと仮定した場合の効率であり、水素製造セル内で燃料がどの程度消費されているかを加味して計算すると変換効率は大幅に高くなると考える。

#### 【0053】

(水素製造例3)

水素製造例1と同じ水素製造セルを用いて、次に、セル温度70℃において、燃料を8ml/分の定流量で、燃料濃度を0.5、1、2Mと変化させた条件でそれぞれ、空気流量を変化させた時の燃料流量、空気流量とガス発生量、セルの開回路電圧の関係を図7に示す。

これより、燃料濃度の小さいほうが、ガスの発生量は大きいことが分かった。

#### 【0054】

図8に図7の結果を開回路電圧とガス発生量の関係として整理した。

これより、それぞれの条件でのガス発生量は開回路電圧に依存し、300～600mVでガスが発生することが分かった。また、いずれの燃料濃度においても、水素製造例1と

同様に450mV付近にその発生量のピークが観察された。

#### 【0055】

##### （水素製造例4）

次に、電解質膜の厚さのガス発生量に与える影響を検討した。

水素製造例1～3では、電解質膜にはデュボン社製ナフィオン115（厚さ130 $\mu$ m）を用いたが、同じくデュボン社製ナフィオン112（厚さ50 $\mu$ m）を用いて同様な水素製造セルを構成し、温度70℃、燃料濃度1M、燃料流量を8ml/分で、それぞれ、空気流量を変化させた時の燃料流量、空気流量とガス発生量、セルの開回路電圧の関係を検討した。

ナフィオン115と112はその材質は同じであり、ここでは純粋に電解質膜の厚さの影響を検討したことになる。検討結果を図9に示す。

これより、水素の発生量はいずれの電解質膜でもほぼ等しいことが分かった。

#### 【0056】

図10に図9の結果を開回路電圧とガス発生量の関係として整理した。これより明かなように、それぞれの条件でのガス発生量は開回路電圧に依存しており、やはり450mV付近にその発生量のピークが観察された。

#### 【0057】

##### （水素製造例5）

電気エネルギーを取り出す手段を備えてなる水素製造セルの概略を図11に示す。

燃料極を負極とし空気極を正極として電気エネルギーを取り出す手段を設けた以外は、水素製造例1の水素製造セルと同じ構造である。

この水素製造セルを熱風循環型の電気炉内に設置し、電池温度50℃で、空気極側に空気を10～90ml/分の流量、燃料極側に1Mのメタノール水溶液（燃料）を5ml/分の流量で流し、その時に空気極と燃料極間を流れる電流を変化させながら、燃料極と空気極の運転電圧、燃料極側で発生するガス量、ガス組成について検討を行った。

#### 【0058】

この試験における、取り出した電流密度と運転電圧の関係を図12に示す。

空気流量が小さくなるとともに、運転電圧が低下し、放電できる限界電流密度の低下が観察された。

#### 【0059】

図13に図12の結果を運転電圧と水素発生量の関係として整理した。

これより、水素発生量は運転電圧に依存する傾向を示し、運転電圧300～600mVでガスが発生することが分かった。また、空気流量が50～60ml/分の場合に最も水素が発生しやすいことが分かった。

#### 【0060】

次に、ガス発生速度の大きかった、温度50℃、燃料流量5ml/分、空気流量50ml/分、電流密度8.4mA/cm<sup>2</sup>の条件でガスを発生させ、ガス中の水素濃度をガスクロマトグラフィーを用いて測定した。

その結果、発生ガス中には水素が約74%含まれ、水素生成速度は5.1ml/分であることが確認された。

#### 【0061】

ここで、重要な点は、本製造例では水素製造セルから外部に電流を取り出していることである。言いかえると本発明の水素製造セルでは、外部にエネルギーを取り出しながら、燃料の一部を水素に変換していることになる。しかも、30～70℃といった脅威的な低温度での改質であり、従来にない、全く新規な水素製造方法であると考えられる。

#### 【0062】

##### （水素製造例6）

外部から電気エネルギーを印加する手段を備えてなる水素製造セルの概略を図14に示す。

燃料極を正極とし前記酸化電極を負極として外部から電気エネルギーを印加する手段を

設けた以外は、水素製造例 1 と同じ構造である。

この水素製造セルを熱風循環型の電気炉内に設置し、電池温度 50℃で、空気極側に空気を 10～80 ml/分の流量、燃料極側に 1 M のメタノール水溶液（燃料）を 5 ml/分の流量で流し、その時に外部から直流電源を用いて空気極と燃料極間に流れる電流を変化させながら、燃料極と空気極の運転電圧、燃料極側で発生するガス量、ガス組成について検討を行った。

#### 【0063】

この試験における、印加した電流密度と水素発生速度の関係を図 15 に示す。

電流密度 40 mA/cm<sup>2</sup>以下の条件で水素発生効率 100%以上の領域があり、この領域で運転を行えば、投入電気エネルギー以上の水素が得られることが分った。

#### 【0064】

図 16 に図 15 の結果を運転電圧と水素発生量の関係として整理した。

これより、水素発生量は運転電圧に依存する傾向を示し、運転電圧 600 mV 以上では水素発生量はほぼ一定となること、空気流量が遅い方が水素が発生しやすいことが分った。

#### 【0065】

印加した電流密度と運転電圧の関係を図 17 に示す。

図 15 で認められた水素発生効率 100%以上の領域はいずれも図 17 の 600 mV 以下の運転電圧であった。

#### 【0066】

次に、最もガス発生効率の高かった、温度 50℃、燃料流量 5 ml/分、空気流量 50 ml/分、電流密度 4.8 mA/cm<sup>2</sup>の条件でガスを発生させ、ガス中の水素濃度をガスクロマトグラフィーを用いて測定した。その結果、発生ガス中には水素が約 86%含まれ、水素生成速度は 7.8 ml/分で、このときの水素発生効率は電気量換算で 352%であることが確認された。

#### 【0067】

ここで、重要な点は、本実施例では水素製造セルに外部から印加した電流以上の水素を取り出していることである。言いかえると本発明の水素製造セルでは、投入したエネルギーによる電解反応以上に、燃料の一部を水素に変換していることになる。しかも、30～70℃といった脅威的な低温度での改質であり、従来にない、全く新規な水素製造方法であると考えられる。

以上のように、本発明の水素供給システムに使用する水素製造装置は、有機物を含む燃料を 100℃以下で分解して水素を含むガスを製造することができるものである。

#### 【図面の簡単な説明】

#### 【0068】

【図 1】 本発明の水素供給システムのシステムフローの一例を示す図である。

【図 2】 水素製造例 1 における水素製造セル（外部から電気エネルギーを供給しないもの）の概略図である。

【図 3】 異なる温度における空気流量とガス発生量及びオープン電圧との関係を示す図である（水素製造例 1）。

【図 4】 異なる温度におけるオープン電圧とガス発生量との関係を示す図である（水素製造例 1）。

【図 5】 異なる燃料流量における空気流量とガス発生量及びオープン電圧との関係を示す図である（水素製造例 2）。

【図 6】 異なる燃料流量におけるオープン電圧とガス発生量との関係を示す図である（水素製造例 2）。

【図 7】 異なる燃料濃度における空気流量とガス発生量及びオープン電圧との関係を示す図である（水素製造例 3）。

【図 8】 異なる燃料濃度におけるオープン電圧とガス発生量との関係を示す図である（水素製造例 3）。

【図 9】厚さの異なる電解質膜における空気流量とガス発生量及びオープン電圧との関係を示す図である（水素製造例 4）。

【図 10】厚さの異なる電解質膜におけるオープン電圧とガス発生量との関係を示す図である（水素製造例 4）。

【図 11】水素製造例 5 における水素製造セル（電気エネルギーを取り出すもの）の概略図である。

【図 12】異なる空気流量における取り出した電流密度と運転電圧との関係を示す図である。

【図 13】異なる空気流量における運転電圧と水素発生量との関係（放電）を示す図である。

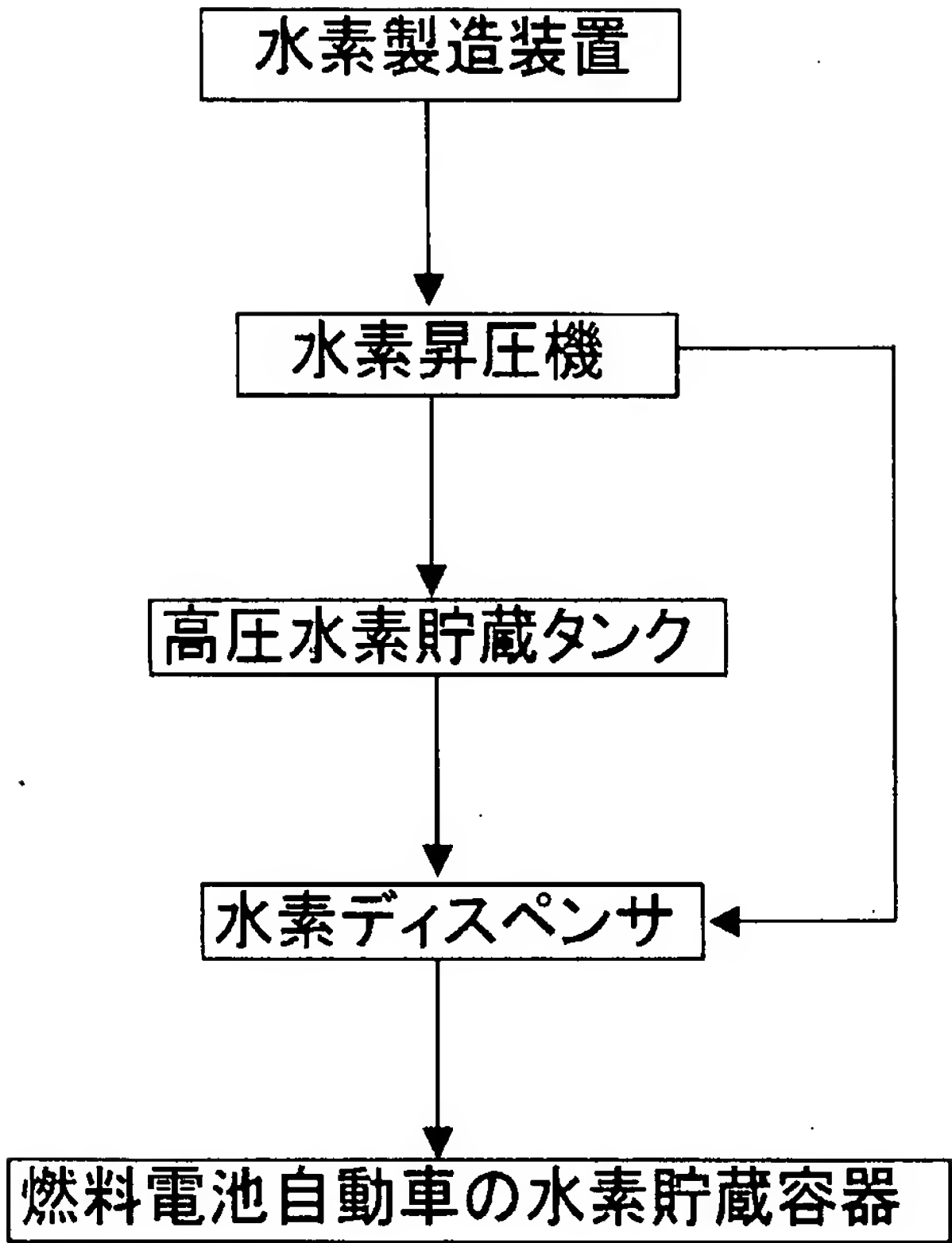
【図 14】水素製造例 6 における水素製造セル（外部から電気エネルギーを印加するもの）の概略図である。

【図 15】異なる空気流量における印加した電流密度と水素発生速度との関係を示す図である。

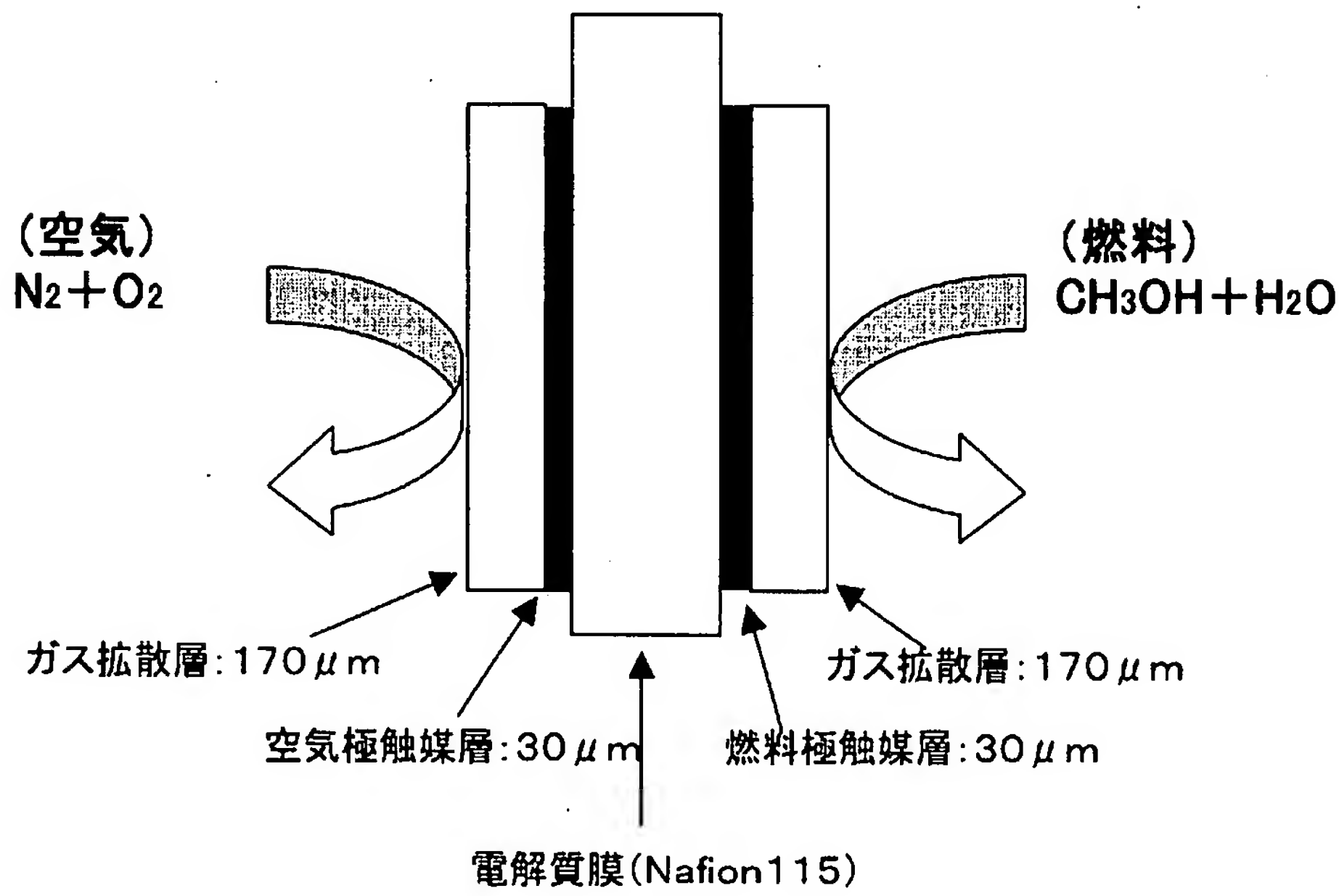
【図 16】異なる空気流量における運転電圧と水素発生量との関係（充電）を示す図である。

【図 17】異なる空気流量における印加した電流密度と運転電圧との関係を示す図である。

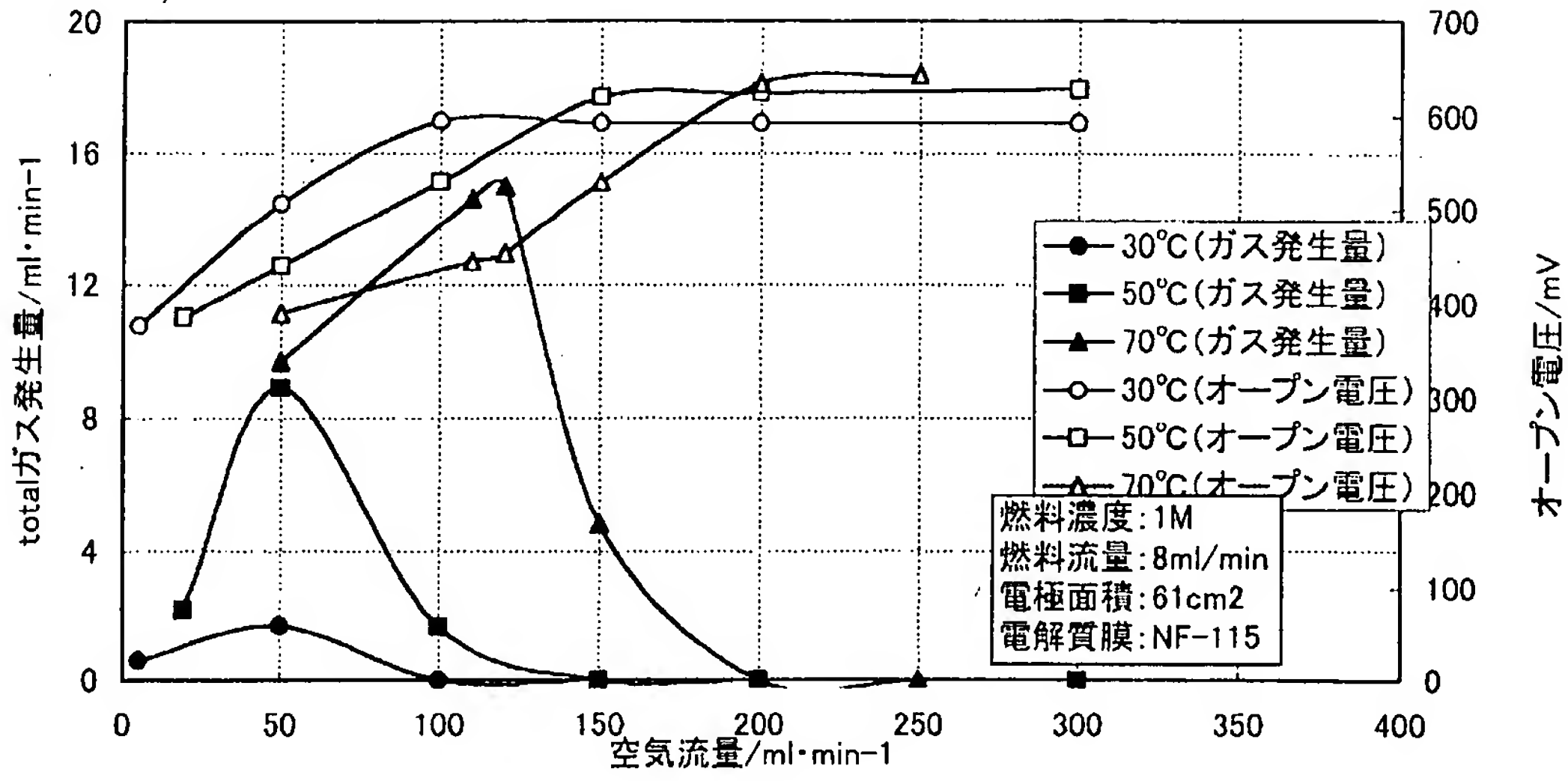
【書類名】 図面  
【図 1】



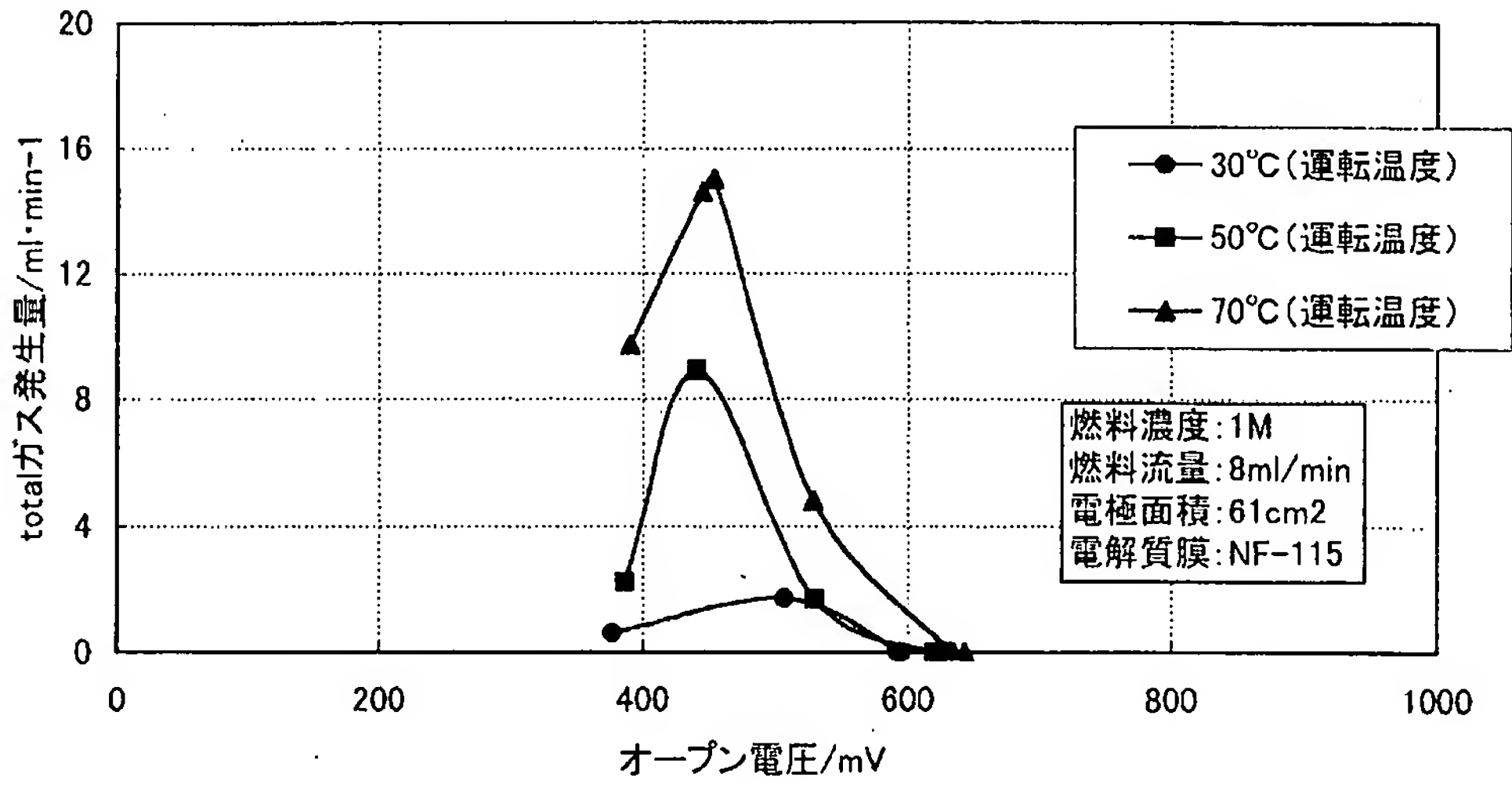
【図 2】



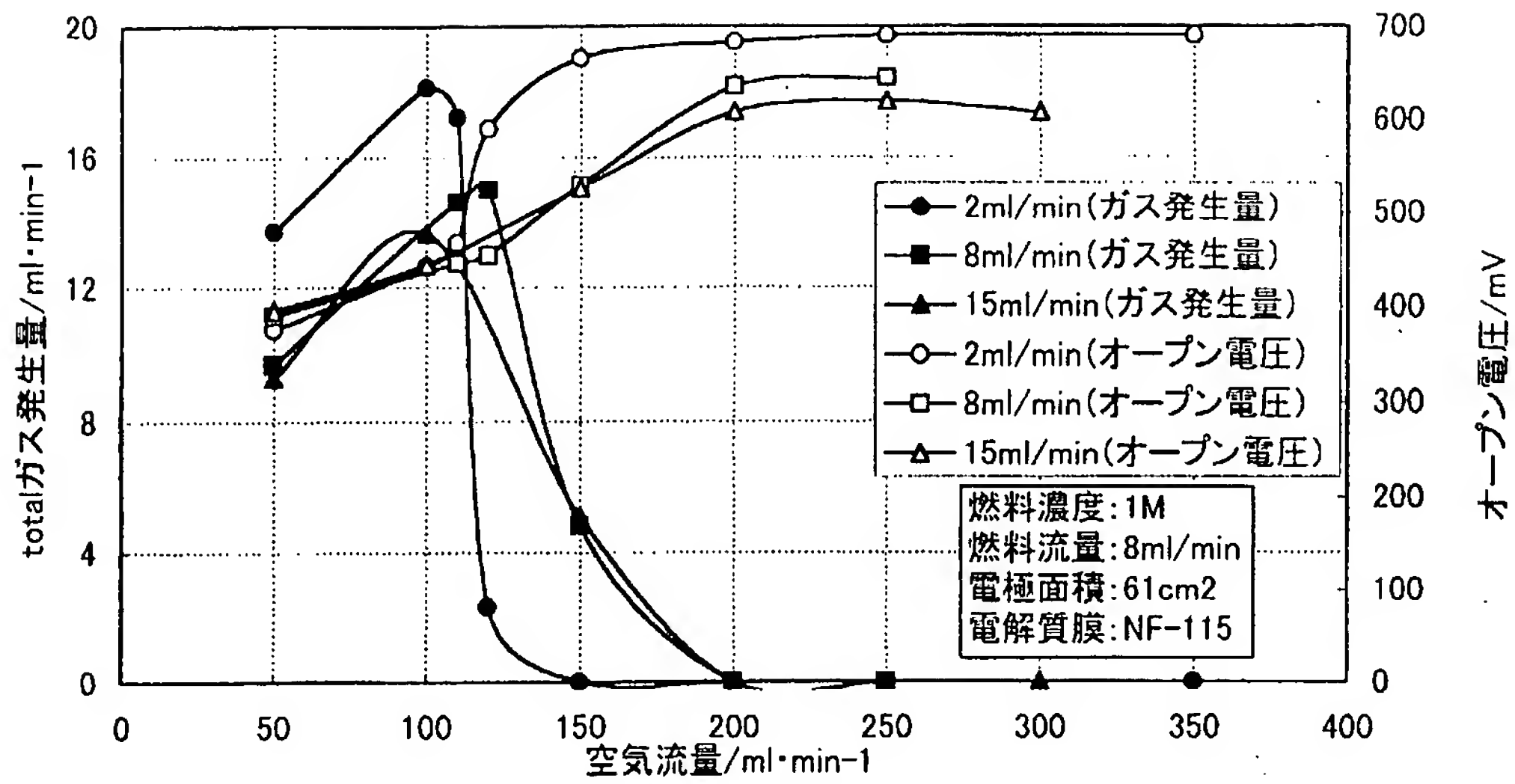
【図 3】



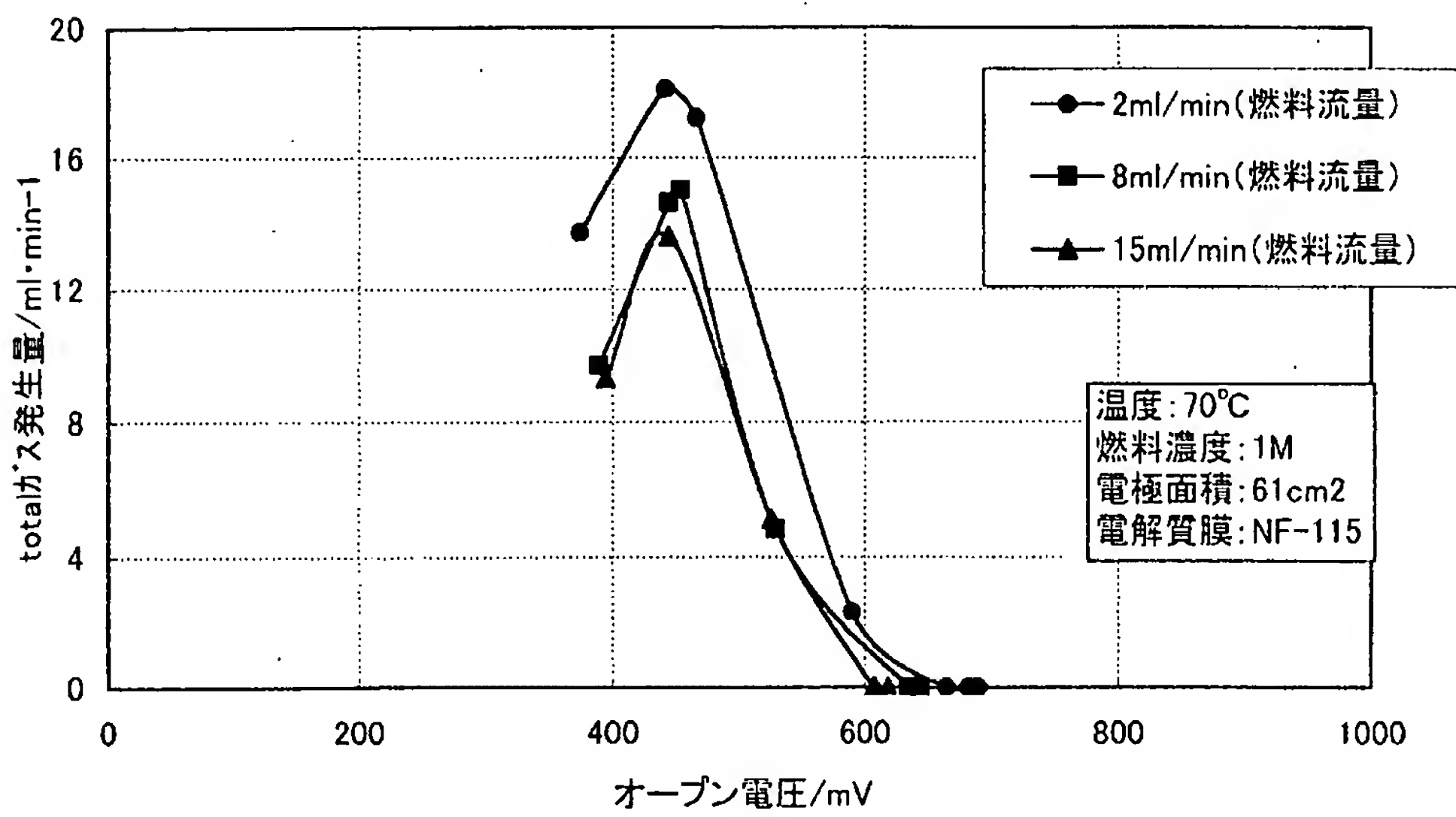
【図 4】



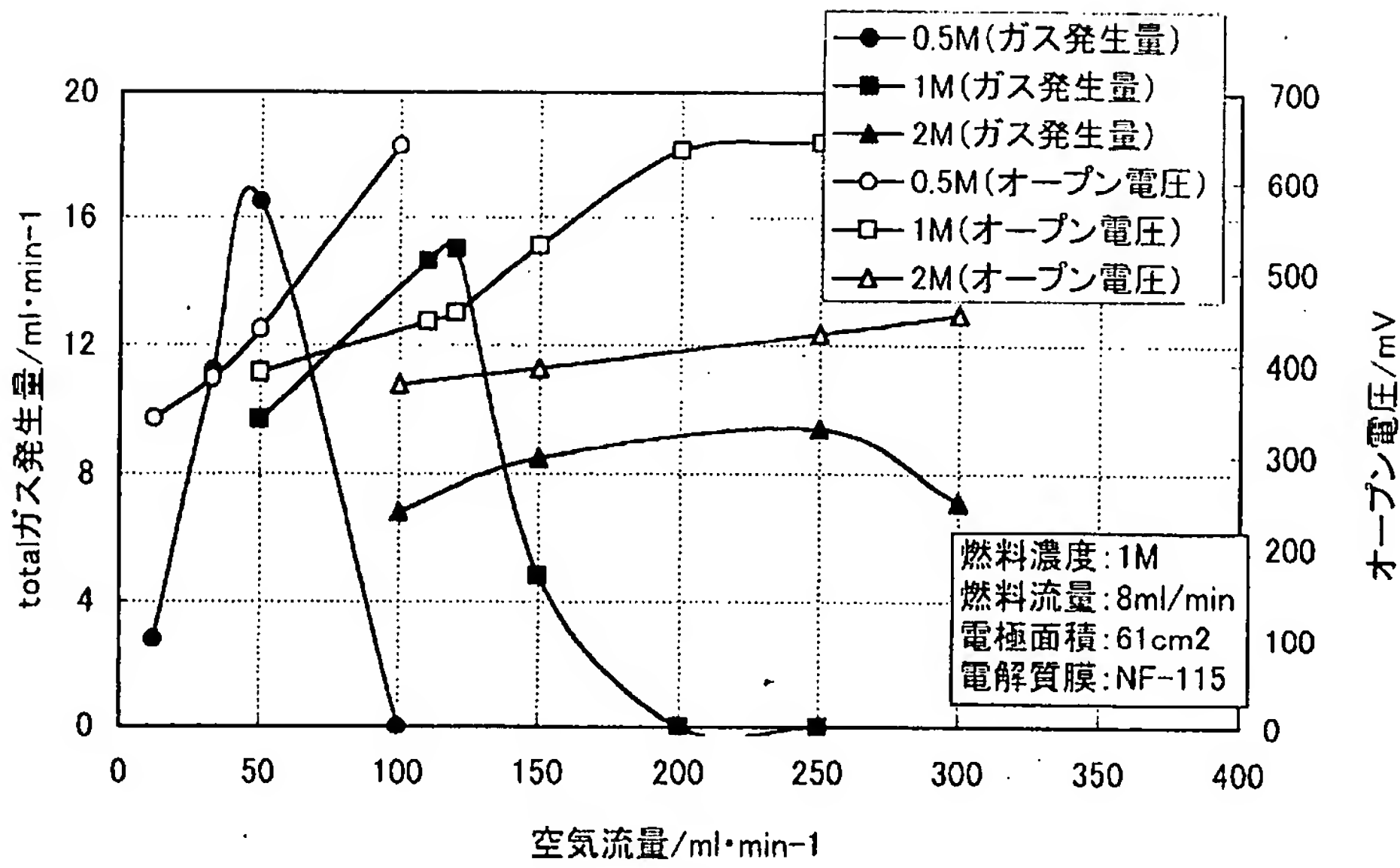
【図 5】



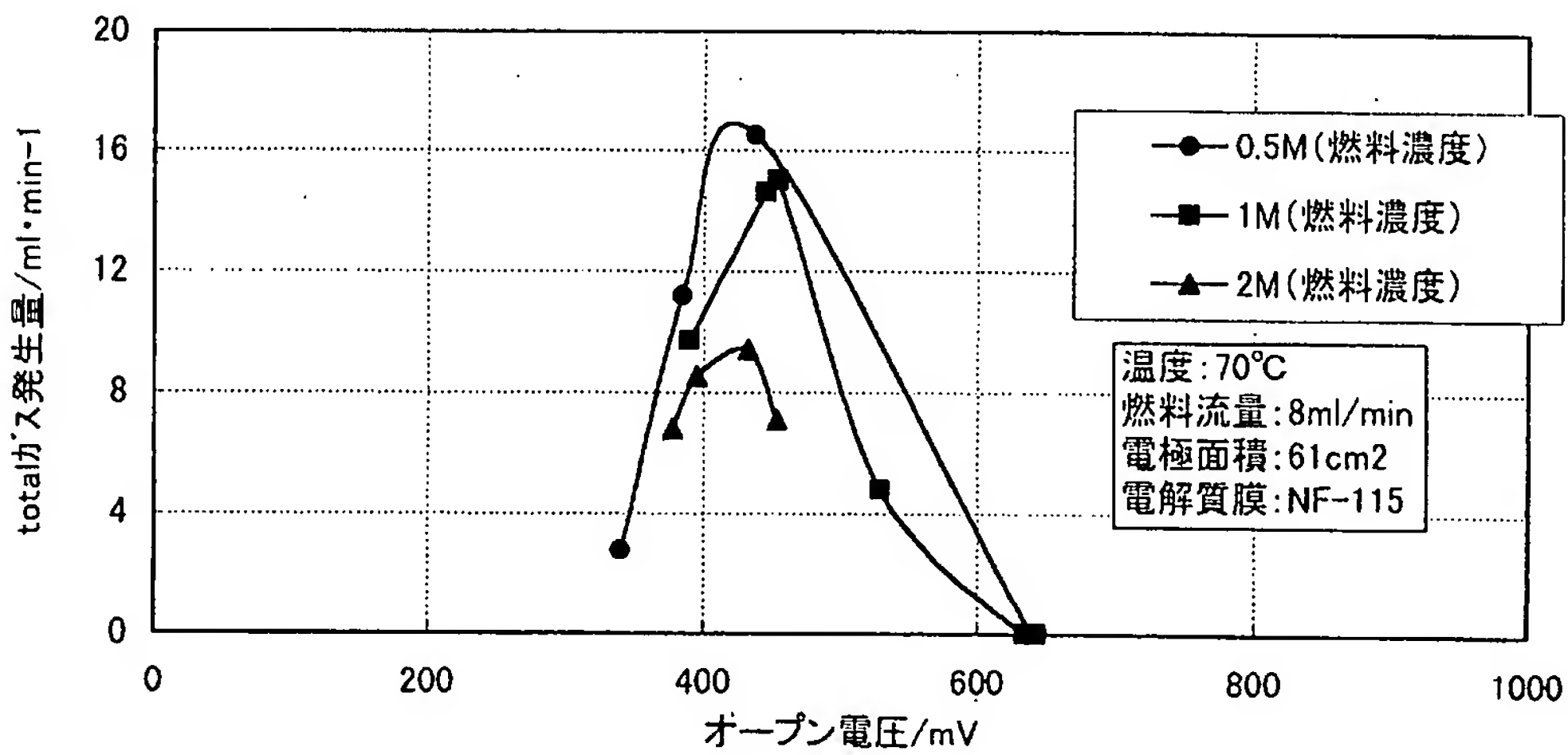
【図 6】



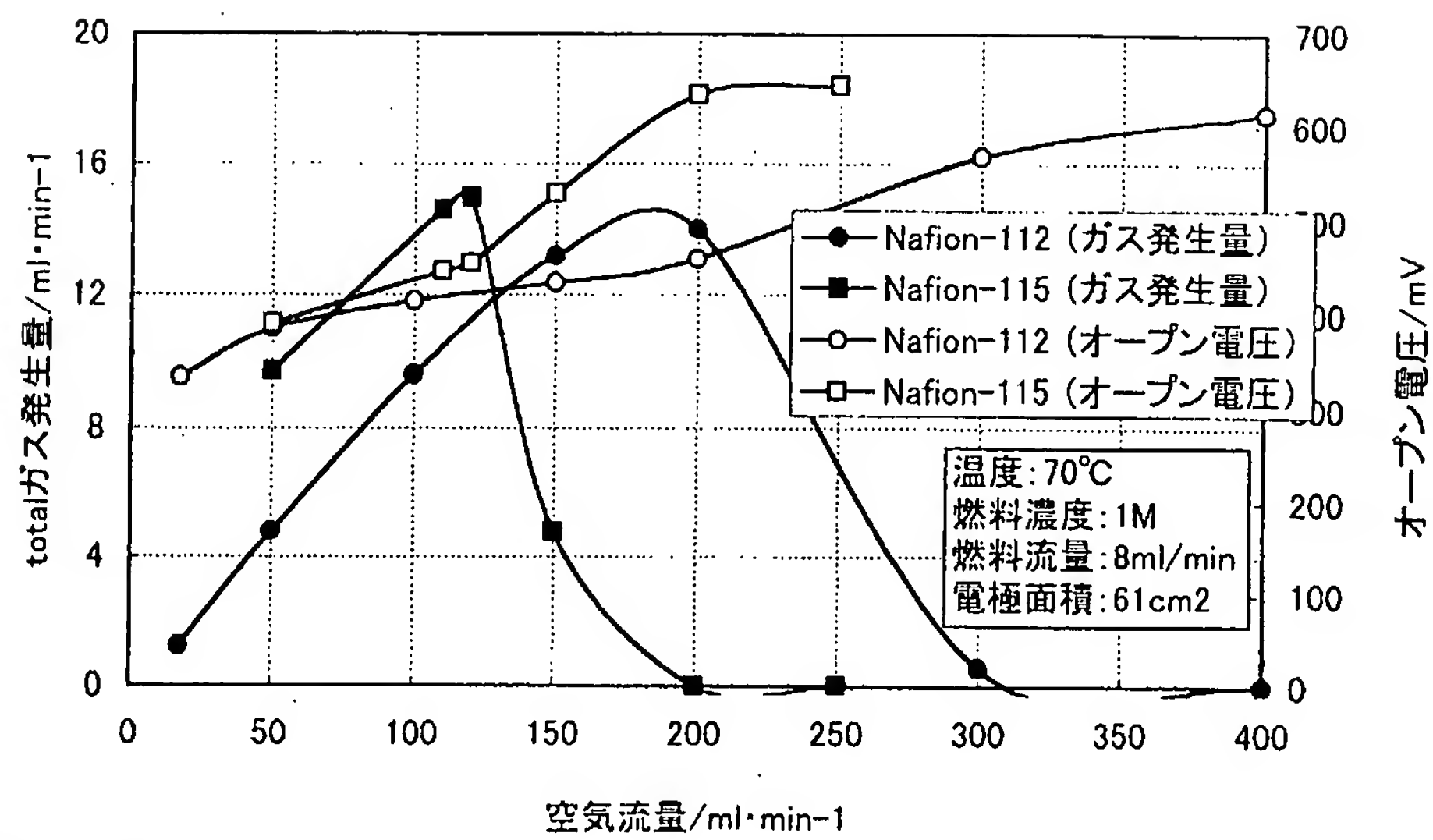
【図 7】



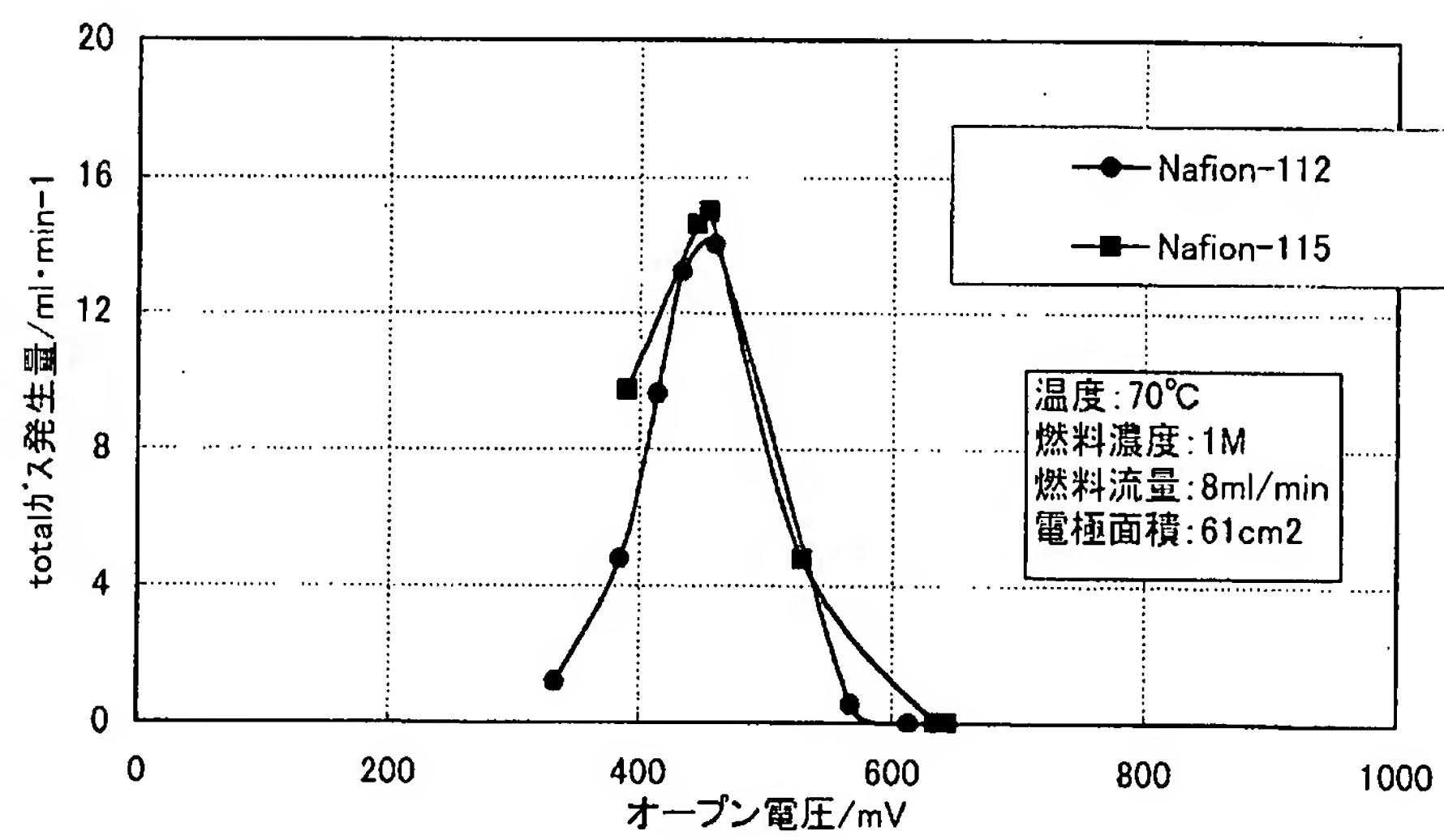
【図 8】



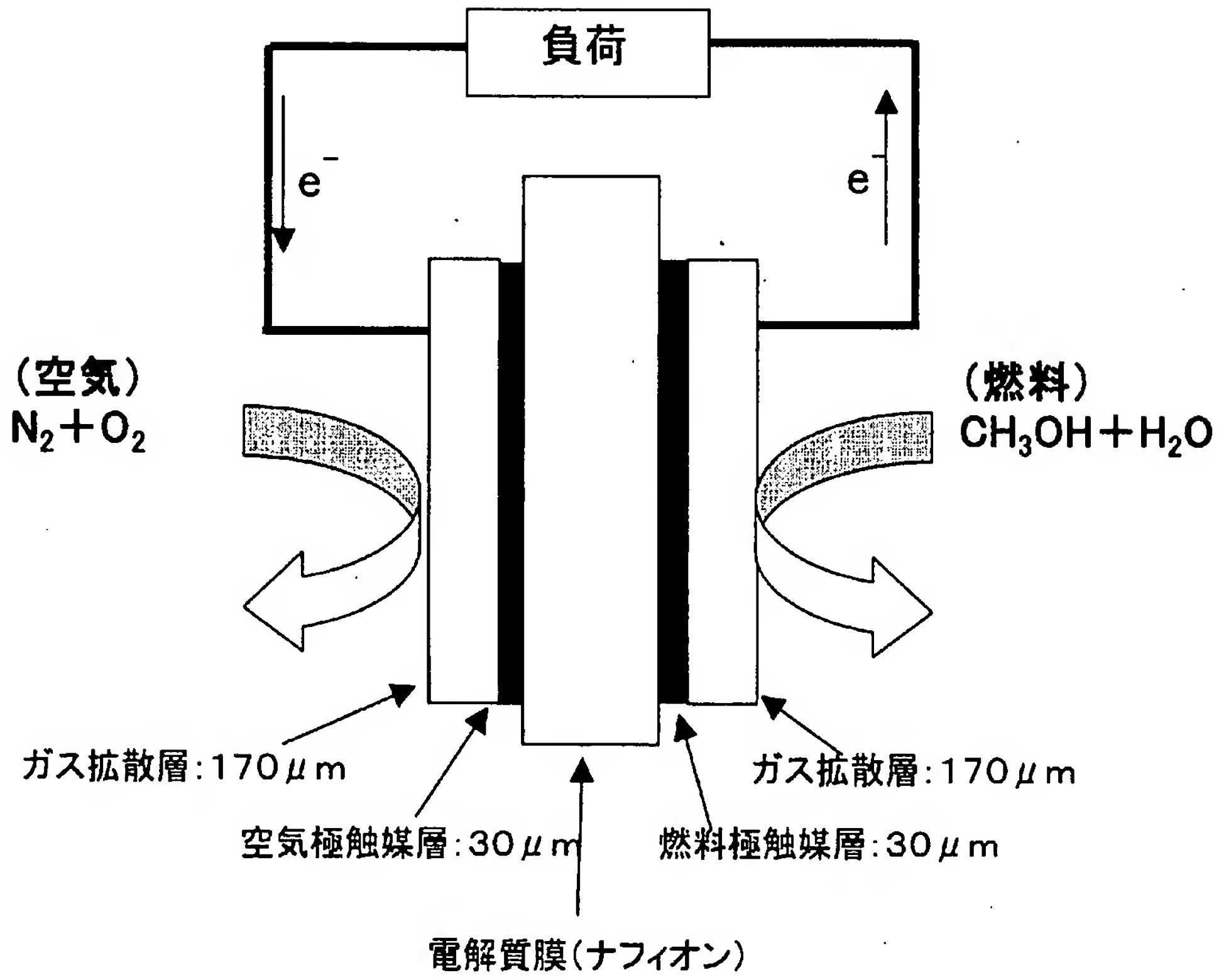
【図 9】



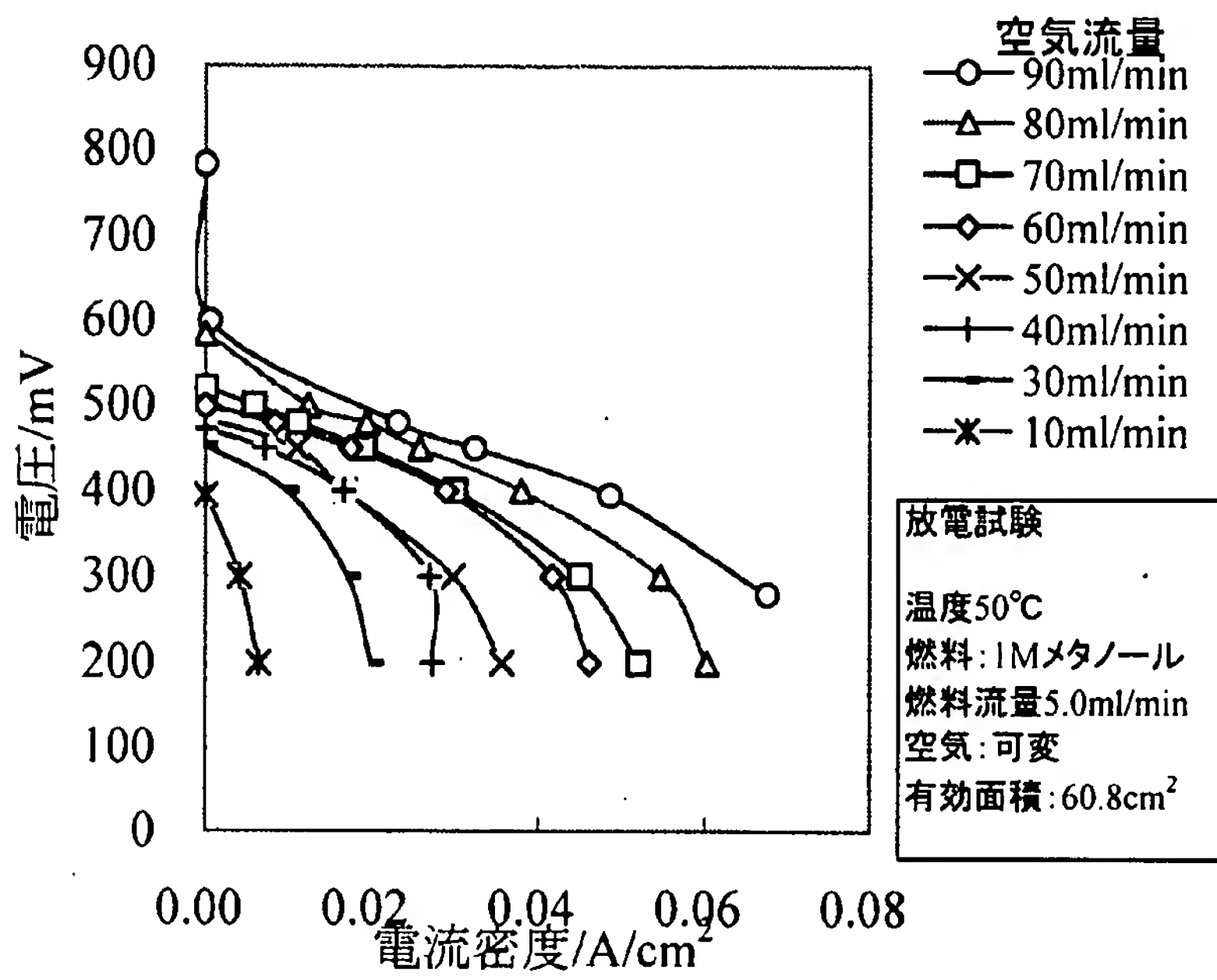
【図 10】



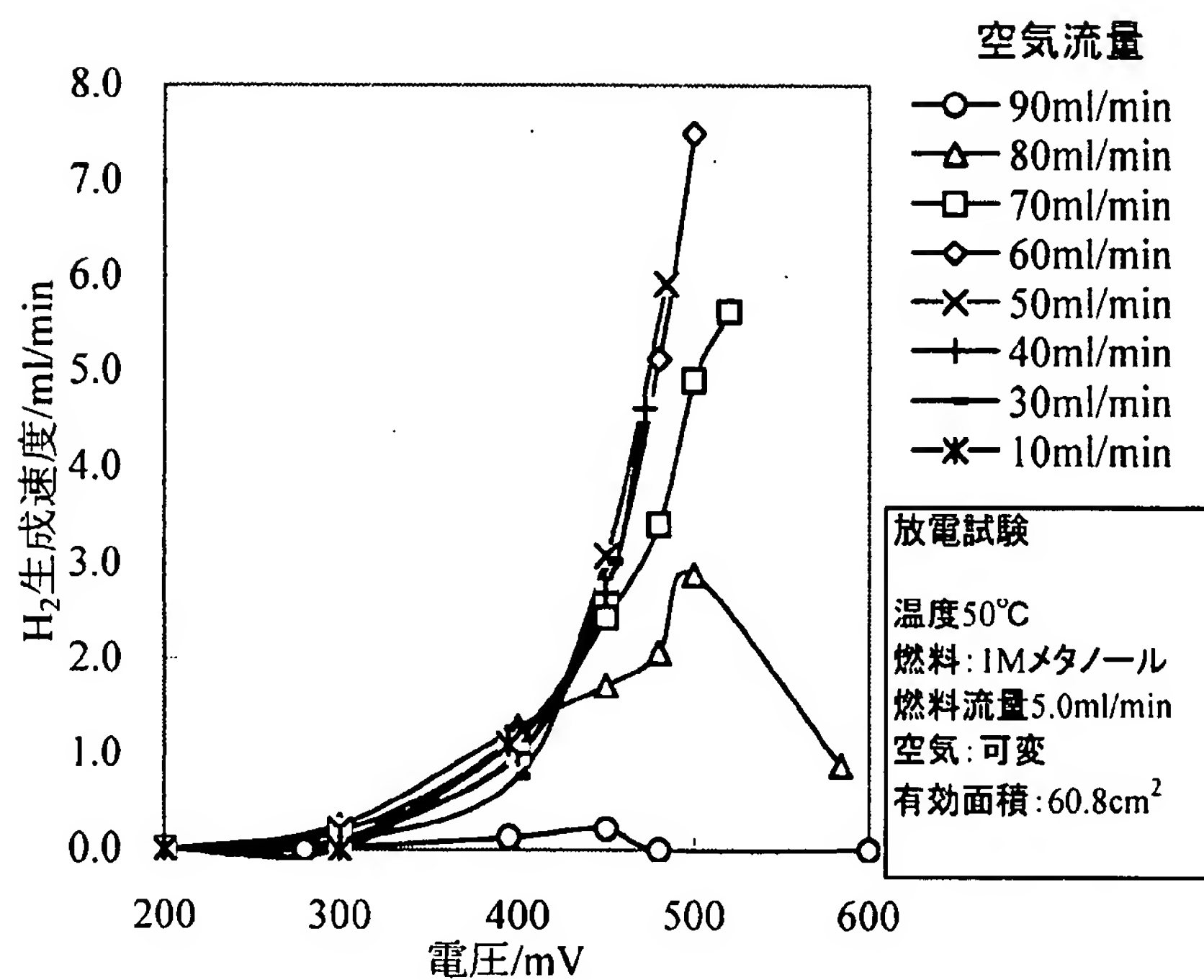
【図 1 1】



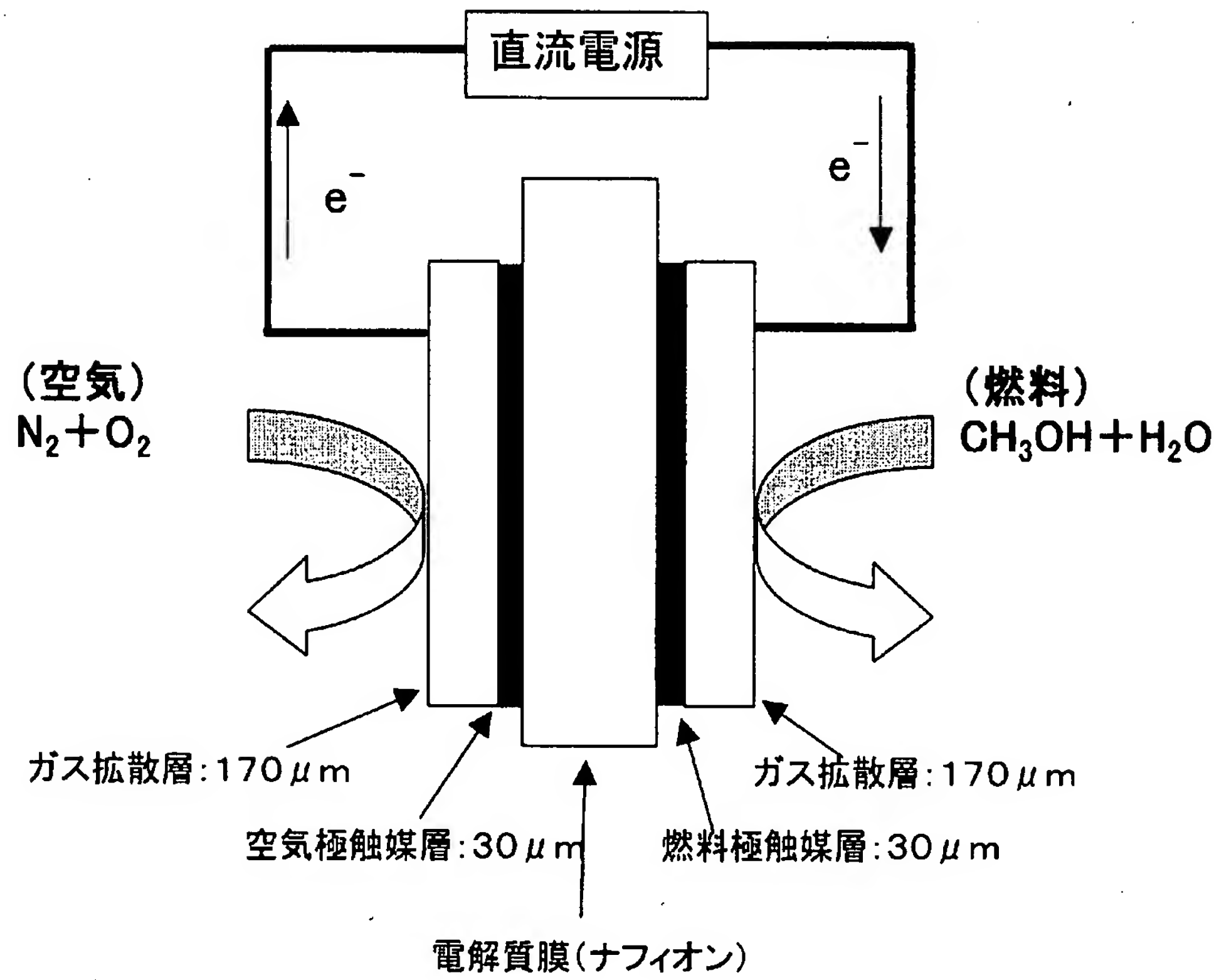
【図 1 2】



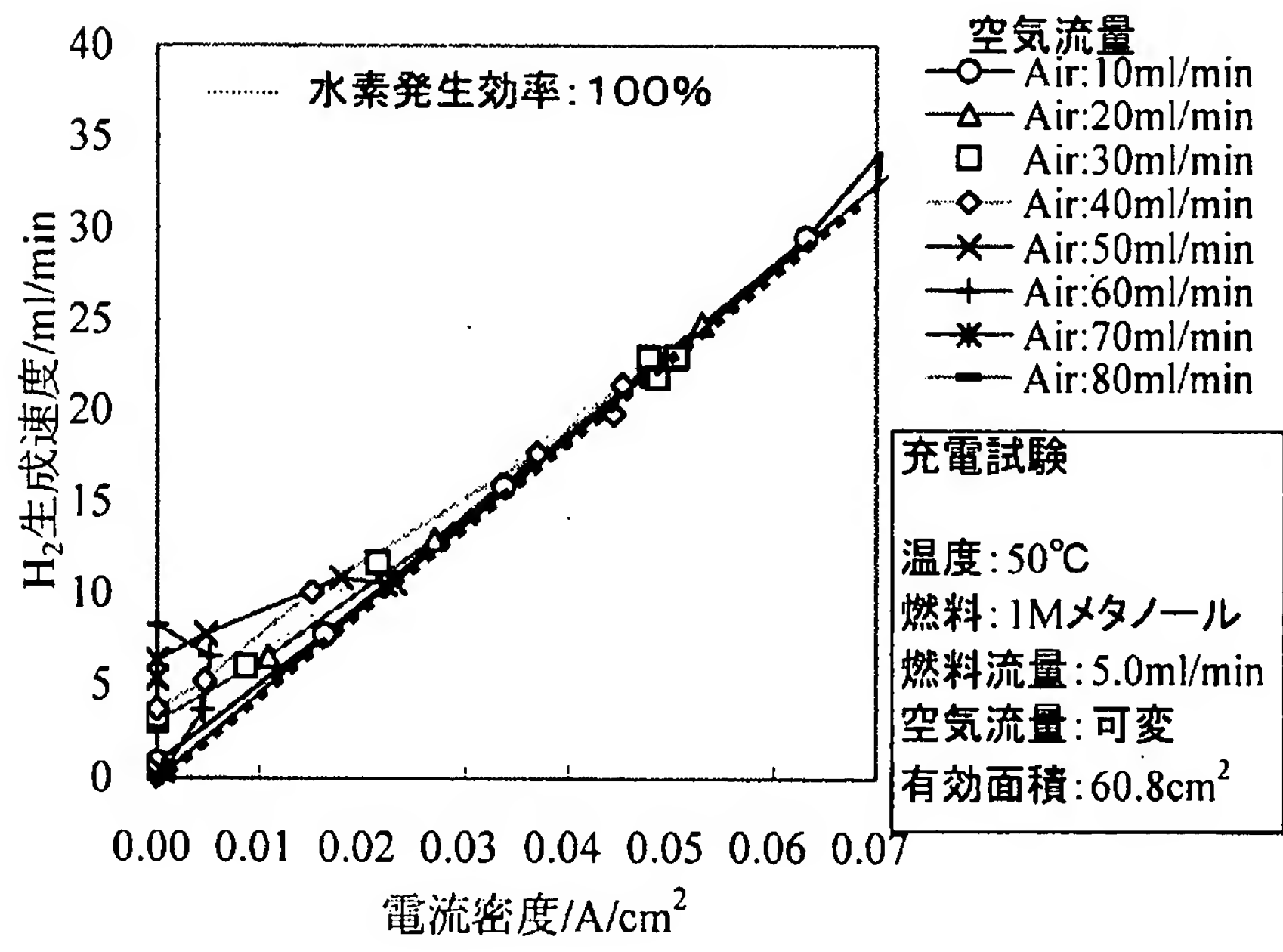
【図 13】



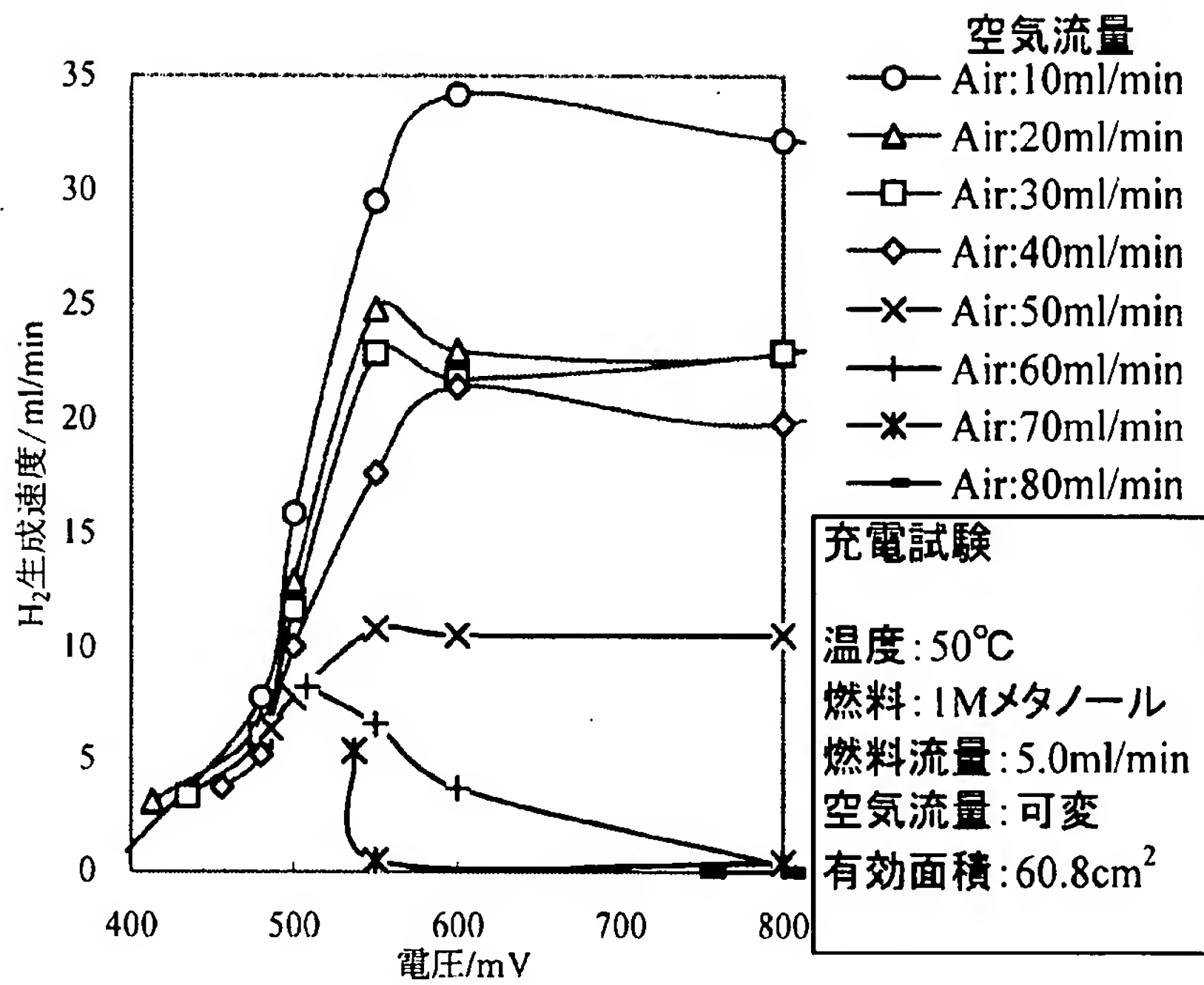
【図 1 4】



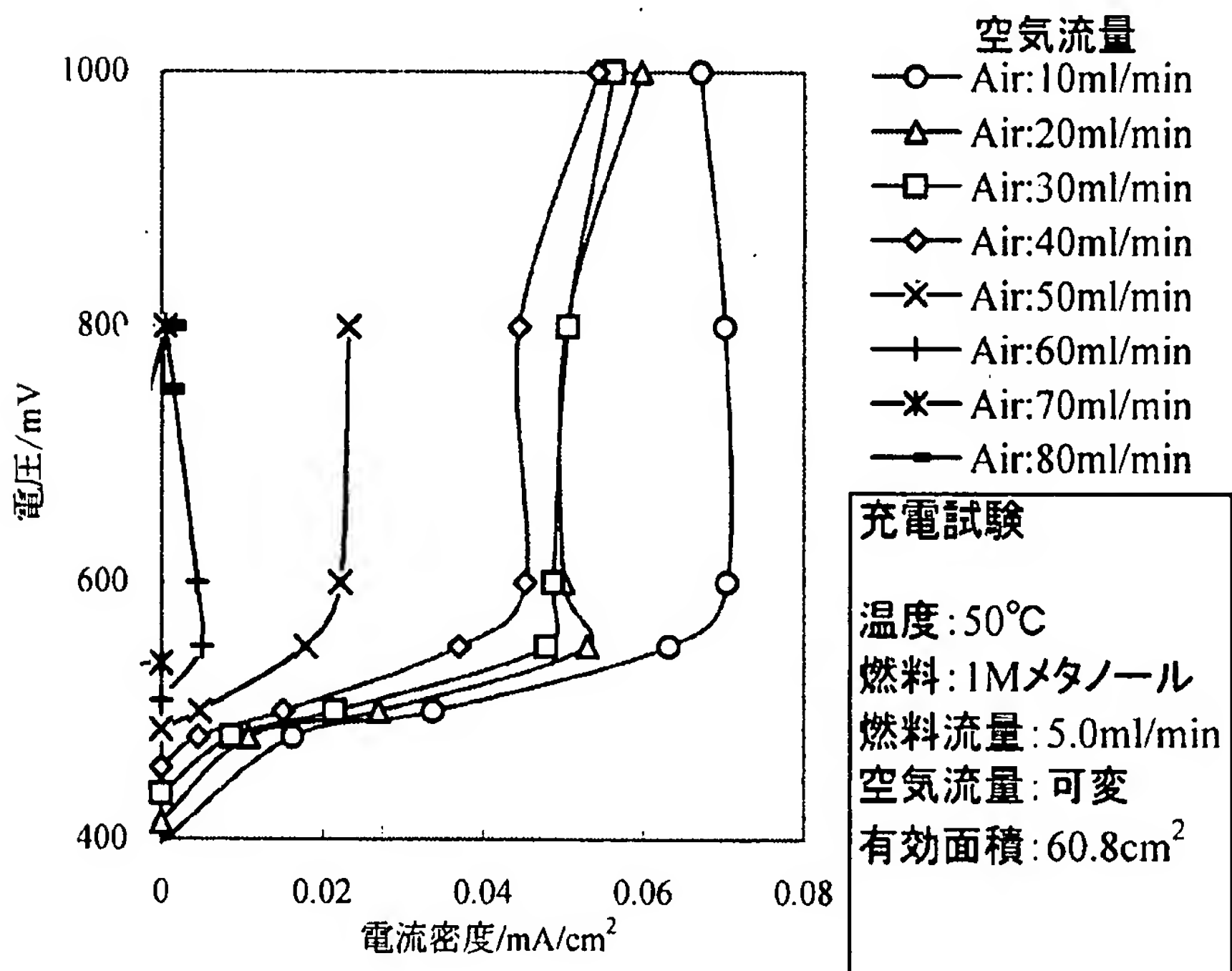
【図 1 5】



【図 1 6】



【図 1 7】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 燃料電池自動車に搭載した水素貯蔵容器に容易に水素を供給することができ、また、低温で水素を含むガスを製造することができ、しかも、大きな電気エネルギーを必要としない水素製造装置を使用した水素供給システムを提供する。

【解決手段】 燃料電池自動車に搭載した水素貯蔵容器に水素を供給する水素供給手段と、前記水素供給手段に供給するための水素を含むガスを製造する水素製造装置と、を備えてなる水素供給システムにおいて、前記水素製造装置が、有機物を含む燃料を100℃以下で分解して水素を含むガスを製造するものであることを特徴とする。また、前記水素製造装置が、隔膜、前記隔膜の一方の面に設けた燃料極、前記燃料極に前記燃料を供給する手段、前記隔膜の他方の面に酸素を含む気体を供給する手段を備えてなることを特徴とする。さらに、前記水素製造装置は、前記燃料極を負極とし酸化電極（前記隔膜の酸素を含む気体を供給する面に設ける）を正極として電気エネルギーを取り出す手段、又は、前記燃料極を正極とし酸化電極を負極として外部から電気エネルギーを印加する手段を備えてもよい。

【選択図】 図1

|          |                  |
|----------|------------------|
| 【書類名】    | 出願人名義変更届         |
| 【整理番号】   | PG16-041YU       |
| 【提出日】    | 平成16年 4月16日      |
| 【あて先】    | 特許庁長官 殿          |
| 【事件の表示】  |                  |
| 【出願番号】   | 特願2004-107932    |
| 【承継人】    |                  |
| 【住所又は居所】 | 大阪府高槻市殿町 1 3 - 3 |
| 【氏名又は名称】 | 奥山 良一            |
| 【承継人代理人】 |                  |
| 【識別番号】   | 100127513        |
| 【弁理士】    |                  |
| 【氏名又は名称】 | 松本 悟             |
| 【手数料の表示】 |                  |
| 【予納台帳番号】 | 214799           |
| 【納付金額】   | 4,200円           |

【書類名】 手続補正書  
【整理番号】 PC16-041YU  
【提出日】 平成16年 4月16日  
【あて先】 特許庁長官 殿  
【事件の表示】  
    【出願番号】 特願2004-107932  
【補正をする者】  
    【識別番号】 000006688  
    【氏名又は名称】 株式会社 ユアサコーポレーション  
【代理人】  
    【識別番号】 100127513  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 松本 悟  
    【電話番号】 03-3272-1711  
【手続補正1】  
    【補正対象書類名】 特許願  
    【補正対象項目名】 発明者  
    【補正方法】 変更  
    【補正の内容】  
        【発明者】  
        【住所又は居所】 大阪府高槻市辻子二丁目2番19号  
        【氏名】 芦田 勝二  
        【発明者】  
        【住所又は居所】 大阪府高槻市殿町13-3  
        【氏名】 奥山 良一  
        【発明者】  
        【住所又は居所】 大阪府高槻市南芥川町19番18号  
        【氏名】 元井 昌司  
        【発明者】  
        【住所又は居所】 兵庫県西宮市寿町3番31号  
        【氏名】 山本 好浩  
  
【手続補正2】  
    【補正対象書類名】 特許願  
    【補正対象項目名】 提出物件の目録  
    【補正方法】 追加  
    【補正の内容】  
        【提出物件の目録】  
        【包括委任状番号】 0308055  
【その他】 誤記の理由は、発明者の住所又は居所を錯誤により会社住所としましたが、自宅住所に訂正いたします。

職権訂正履歴（職権訂正）

|         |                          |
|---------|--------------------------|
| 特許出願の番号 | 特願 2 0 0 4 - 1 0 7 9 3 2 |
| 受付番号    | 5 0 4 0 0 6 5 0 8 7 5    |
| 書類名     | 手続補正書                    |
| 担当官     | 角田 芳生 1 9 1 8            |
| 作成日     | 平成 1 6 年 5 月 2 5 日       |

<訂正内容 1>

訂正ドキュメント

書誌

訂正原因

職権による訂正

訂正メモ

補正の仕方が間違っているので訂正します。

上記訂正により【手続補正6】を【手続補正2】と訂正します。

訂正前内容

【手続補正1】

【補正対象書類名】 特許願

【補正対象項目名】 発明者

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府高槻市辻子二丁目 2 2 番 1 9 号

【氏名】 芦田 勝二

【手続補正2】

【補正対象書類名】 特許願

【補正対象項目名】 発明者

.....

訂正後内容

【手続補正1】

【補正対象書類名】 特許願

【補正対象項目名】 発明者

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府高槻市辻子二丁目 2 2 番 1 9 号

【氏名】 芦田 勝二

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府高槻市殿町 1 3 - 3

.....

|          |                    |
|----------|--------------------|
| 【書類名】    | 出願人名義変更届           |
| 【整理番号】   | PC16-041YU         |
| 【提出日】    | 平成16年 6月22日        |
| 【あて先】    | 特許庁長官 殿            |
| 【事件の表示】  |                    |
| 【出願番号】   | 特願2004-107932      |
| 【承継人】    |                    |
| 【識別番号】   | 000006688          |
| 【住所又は居所】 | 大阪府高槻市古曽部町二丁目3番21号 |
| 【氏名又は名称】 | 株式会社 ユアサコーポレーション   |
| 【承継人代理人】 |                    |
| 【識別番号】   | 100127513          |
| 【弁理士】    |                    |
| 【氏名又は名称】 | 松本 悟               |
| 【譲渡人】    |                    |
| 【識別番号】   | 504153277          |
| 【住所又は居所】 | 大阪府高槻市殿町13-3       |
| 【氏名又は名称】 | 奥山 良一              |
| 【譲渡人代理人】 |                    |
| 【識別番号】   | 100127513          |
| 【弁理士】    |                    |
| 【氏名又は名称】 | 松本 悟               |
| 【電話番号】   | 03-3272-1711       |
| 【手数料の表示】 |                    |
| 【予納台帳番号】 | 214799             |
| 【納付金額】   | 4,200円             |

出願人履歴

0 0 0 0 0 6 6 8 8

19990702

住所変更

大阪府高槻市古曽部町二丁目3番21号

株式会社ユアサコーポレーション

5 0 4 1 5 3 2 7 7

20040416

新規登録

大阪府高槻市殿町13-3

奥山 良一